



# DYNAMISCHE KONTROLLE EXZITONISCHER SYSTEME

Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaften  
(Dr. rer. nat.)

dem Fachbereich Physik  
der Philipps-Universität Marburg  
vorgelegt

von

**Benjamin Ewers**  
aus Bad Karlshafen

Marburg (Lahn), 2015

Vom Fachbereich Physik der Philipps-Universität als Dissertation  
angenommen

am: 07.10.2014

Erstgutachter: Priv. Doz. Sangam Chatterjee, Ph.D.

Zweitgutachter: Prof. Dr. Wolfgang Parak

Tag der mündlichen Prüfung: 16.12.2014

Hochschulkennziffer 1180







---

Because we can.



# DANKSAGUNGEN

Es gibt viele Personen die mich bei der Entstehung dieser Arbeit entscheidend unterstützt haben. An dieser Stelle möchte ich Euch danken. An ganz besonderes Dank geht an die folgenden Personen.

- Prof. Dr. Martin Koch, für die Möglichkeit in seiner Arbeitsgruppe zu arbeiten, für die Freiheiten die er mir gab um kreativ zu forschen, für die wissenschaftlichen Diskussionen und natürlich für jegliche Unterstützung die er mir in jeder Lebenssituation zuteil werden ließ.
- PD Dr. Sangam Chatterjee der immer mit Rat und Tat zur Seite stand für die viele Unterstützung, die viele Zeit zusammen im Labor und die immer tolle und fruchtbare Zusammenarbeit. Natürlich danke auch ich für die vielen Gummibärchen, Colorados und Berries (die kleinen Himbeeren die ich so mag).
- Prof. Dr. Stephan W. Koch und Prof. Dr. Mackillo Kira für die vielen Diskussionen und der fruchtbaren Zusammenarbeit
- Andrea Klettke, Benjamin Breddermann und Lukas Schneebeili für die gute Zusammenarbeit, auch wenn es uns manchmal schwer fiel theoretische und experimentelle Herangehensweise aufeinander abzustimmen ☺.
- Rüdiger Rink und der Mechanikwerkstatt für die vielen Arbei-

ten, die mit höchster Präzision gefertigt wurden (Rudi, die Reiterstifte sind min.  $10\,\mu m$  zu dick, im Sommer passen die nicht in die Reiter).

- Matthias Born und der ganzen Elektronikwerkstatt für die vielen kleinen coolen Gadgets und die Nachhilfe in Elektrotechnik.
- Andreas Oppermann für den vielen Computer-Nerdtalk.
- Frau Ehlers und Frau Webel für die viele Hilfe und Nachsicht.
- Der ganzen Arbeitsgruppe experimentelle Halbleiterphysik von Prof. Martin Koch. Das sind Martina Carsjens, Elias Eckert, Christian Jansen, Andreas Mohrland, Maik Scheller, Benedikt Scherger, Sören Schäfer, Phillip Springer, Matthias Stecher, Nico Vieweg, Steffen Wietzke, Lennart Duschek, Hendrik Hähnel, Dimitri Kalincev, Alexander Knöß, Christoph Möller, Jonas Quant, Hanna Schneider, Riccardo Scott, Dalia Al-Nakdali, Norman Born, Stefan Busch, Michael Drexler, Mahmoud Abdel Aziz Gafaar, Ralf Gente, Bernd Heinen, Tilmann Jung, Sina Lippert, Ole Peters, Thorsten Probst, Marco Reuter, Steffen Schumann, Michael Schwerdtfeger, Mohammed Khaled Shakfa, Ajanth Velauthapillai, Matthias Wichmann und Ronja Woscholski.
- Meinen Diplomanden Ulrich Fromme und Daniel Müller
- Den Mitarbeitern aus der Arbeitsgruppe von Sangam Chatterjee. Das sind Kolja Kolata, Nils Rosemann, Björn Metzger, Michael Schwalm, Jens Herrmann und André Ludwig.
- Dr. Harald Schneider und seinen Mitarbeitern, insbesondere Sabine Zybelle.
- Ein ganz besonder Dank gilt Niko Köster, Alexej Chernikov und

Kapil Kohli.

- Meinen Eltern und meiner Familie, die immer zu mir stand und mich jederzeit unterstützte.
- Meiner Frau Sylvia, die mich immer unterstützte und mir immer zur Seite stand.



## EIGENE VERÖFFENTLICHUNGEN

Im Rahmen dieser Arbeit sind folgende Veröffentlichungen entstanden.

- [1] B. Ewers, N. Köster, R. Woscholski u. a. „Ionization of coherent excitons by strong terahertz fields“. In: *Phys Rev B* 85.7 (2012), S. 075307.
- [2] B. Ewers, N. S. Koester, R. Woscholski u. a. „THz control of matter states: Coherent excitons beyond the Rabi-splitting“. In: *Quantum Electronics and Laser Science Conference*. Optical Society of America. 2012.
- [3] S. Schumann, S. Busch, M. Schwerdtfeger u. a. „Spectrum to space computed THz-tomography“. In: *Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz), 2012 37<sup>th</sup> International Conference on*. IEEE. 2012, S. 1–2.
- [4] W. Rice, J. Kono, S. Zybell u. a. „Observation of Forbidden Exciton Transitions Mediated by Coulomb Interactions in Photoexcited Semiconductor Quantum Wells“. In: *Physical Review Letters* 110.13 (2013), S. 137404.
- [5] Y. Lin, D. Xie, W. Massa u. a. „Changes in the Structural Dimensionality of Selenidostannates in Ionic Liquids: Formation, Structures, Stability, and Photoconductivity“. In: *Chemistry-A European Journal* 19.27 (2013), S. 8806–8813.

- [6] C. Böttge, S. Koch, L. Schneebeli u. a. „Terahertz-induced exciton signatures in semiconductors“. In: *physica status solidi (b)* (2013).
- [7] B. Ewers, N. Köster, R. Woscholski u. a. „THz-manipulation of excitonic polarization in (GaIn) As/GaAs quantum wells“. In: *physica status solidi (c)* (2013).
- [8] N. S. Köster, A. C. Klettke, B. Ewers u. a. „Controlling the polarization dynamics by strong THz fields in photoexcited germanium quantum wells“. In: *New Journal of Physics* 15.7 (2013), S. 075004.



# INHALTSVERZEICHNIS

<b>Danksagungen</b>	<b>I</b>
<b>Eigene Veröffentlichungen</b>	<b>V</b>
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>IX</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Grundlagen</b>	<b>5</b>
2.1 Exzitonen . . . . .	5
2.1.1 Exzitonbildung . . . . .	7
2.1.2 Vielteilchenwechselwirkung . . . . .	9
2.2 Licht-Materie-Wechselwirkung . . . . .	10
2.2.1 Licht-Materie-Wechselwirkung von Halbleitersys- temen . . . . .	11
2.2.2 Optische Kopplung . . . . .	12
2.3 Experimentelle Grundlagen . . . . .	15
2.3.1 Anrege-Abfrage-Spektroskopie . . . . .	15
2.3.2 Photolumiszenzspektroskopie . . . . .	19
2.3.3 Terahertzstrahlung . . . . .	21
2.3.4 Experimenteller Aufbau . . . . .	30
2.4 Proben . . . . .	35
2.4.1 (Ga,In)As . . . . .	35
2.4.2 Verwendete Proben . . . . .	37

<b>3</b>	<b>Aufbau zur Erzeugung starker THz-Impulse in einer neuartigen Cherenkov-Geometrie</b>	<b>39</b>
3.1	Aufbau einer starken THz-Quelle in neuer Cherenkov-Geometrie . . . . .	39
3.2	Kippwinkel der optischen Impulsfront . . . . .	42
3.3	Impulsverlauf und Spektrum . . . . .	44
3.4	Abstrahlcharakteristik . . . . .	46
3.5	Impulsenergie und Konversionseffizienz . . . . .	47
3.6	Aussichten . . . . .	48
<b>4</b>	<b>Dynamik exzitonischer Systeme</b>	<b>51</b>
4.1	Grundlagen . . . . .	52
4.2	Einfluss der THz-Feldstärke . . . . .	57
4.3	Theoretische Betrachtung der Vielteilchen-Charakteristik	61
4.3.1	Einfluss der ponderomotiven Kräfte . . . . .	65
4.4	Zusammenfassung . . . . .	66
<b>5</b>	<b>Kontrolle exzitonischer Systeme</b>	<b>69</b>
5.1	Grundlagen . . . . .	70
5.2	Manipulation exzitonischer Populationen . . . . .	73
5.3	Manipulation exzitonischer Polarisationen . . . . .	79
5.3.1	Polarisierte Emission . . . . .	85
5.3.2	Konversionseffizienz . . . . .	89
5.4	Kontrolle exzitonischer Systeme . . . . .	89
5.5	Mehr-Photonen-Anregung . . . . .	93
5.6	Zusammenfassung . . . . .	101
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>103</b>
<b>7</b>	<b>Summery</b>	<b>123</b>

# ABBILDUNGSVERZEICHNIS

2.1	Vergleich des ein-Teilchen-Bild mit dem zwei-Teilchen-Bild . . . . .	6
2.2	Absorptionsspektrum einer Ga(In)As-Quantenfilmprobe . . . . .	8
2.3	Bildung exzitonischer Polarisaton und Population . . . . .	8
2.4	Optischer Anrege-Abfrage-Spektroskopie Aufbau . . . . .	17
2.5	Schematische Darstellung einer Streak-Kamera . . . . .	19
2.6	Beispiel einer Typischen Photolumineszenzmessung mit einer Streak-Kamera. . . . .	21
2.7	Feldstärke des THz-Impulses in Abhängigkeit von der anliegenden elektrischen Spannung an der Antenne. . . . .	25
2.8	THz-Antenne mit großer Apertur . . . . .	26
2.9	THz-Impuls . . . . .	27
2.10	Aufbau zur elektro-optischen Abtastung . . . . .	29
2.11	Schematische Abbildung eines Freien-Elektronen-Lasers für die Generation von starken THz-Impulsen. . . . .	29
2.12	Energetisches Spektrum der verwendeten FEL-THz-Impulsen . . . . .	30
2.13	Experimenteller Aufbau für die synchrone NIR-THz-Transmissionsspektroskopie. . . . .	32
2.14	Experimenteller Aufbau für die terahertz - optische - Photolumineszenzspektroskopie. . . . .	34
2.15	Berechnete Bandstruktur einer <i>GaAs</i> -Probe . . . . .	36
2.16	Transmissionsspektrum der Probe DBR13. . . . .	38
2.17	Transmissionsspektrum der Probe DBR42. . . . .	38

3.1	Zusammenhang zwischen eingestrahltm optischen Impuls, induzierter Polarisaton und abgestrahltm THz-Feld . . . . .	40
3.2	Konventioneller Aufbau für die Generation starker THz-Strahlung in Cherenkov-Geometrie . . . . .	41
3.3	Experimenteller Aufbau für die THz-Generation mittels Photomischung in Cherenkov-Geometrie . . . . .	43
3.4	Abhängigkeit der generierten THz-Intensität von dem eingestellten Einstrahlwinkel auf das Gitter . . . . .	44
3.5	Amplitudenverlauf der generierten THz-Impulse . . . .	45
3.6	THz-Intensität des divergenten Strahls in Abhängigkeit des Einfallwinkels in den Detektor relativ zur Ausbreitungsrichtung . . . . .	47
3.7	THz-Impulsenergie in Abhängigkeit von der optischen Impulsenergie . . . . .	48
4.1	Vereinfachte, schematische Darstellung der Energieniveaus eines exzitonischen Systems unter Einfluss eines treibenden elektromagnetischen Feldes im THz-Frequenzbereich . . . . .	54
4.2	Absorption der verwendeten Probe unter Einfluss eines starken THz-Feldes . . . . .	57
4.3	Optisches Spektrum in Abhängigkeit von der Feldstärke des THz-Feldes . . . . .	58
4.4	Rabi-Aufspaltung in Abhängigkeit der THz-Feldstärke	60
4.5	Absorptionsspektrum der $ 1s\rangle$ -Resonanz bei zunehmender THz-Feldstärke. . . . .	61
4.6	Berechnete Absorptionsspektren und temporäre Dynamik	63
4.7	Berechnete Besetzungswahrscheinlichkeit der Kontinuumszustände . . . . .	65
4.8	Einfluss des ponderomotiven Stroms auf die Verschiebung der Resonanz. . . . .	66
5.1	Spektrum des verwendeten partiellen Graufilters . . .	71

5.2	Schematische Darstellung der Energieniveaus eines ex- zitonischen Systems bei resonanter Anregung durch einen NIR-Impuls und einem starken THz-Feld . . . . .	72
5.3	Zusammenhang zwischen Leistung der gepulsten THz- Strahlung und der maximalen Feldstärke am Probenort. Zusammenhang zwischen Leistung der gepulsten Nah- Infrarot-Strahlung und der Photonendichte am Probenort	73
5.4	Zeitlicher Verlauf der PL Intensität mit THz-Anregung	74
5.5	PL Spektrum mit und ohne THz-Anregung zu unter- schiedlichen Zeitpunkten . . . . .	76
5.6	Vergleich der experimentell gemessenen Daten mit den Daten der theoretischen Berechnung . . . . .	79
5.7	Zeitlicher und spektraler Verlauf der PL-Intensität . .	80
5.8	Zeitlicher und spektraler Verlauf der PL-Intensität . .	81
5.9	Zeitlicher Verlauf der PL-Intensität unter verschiedenen Anregungsintensitäten . . . . .	82
5.10	Halbwertszeit des späten monoexponentiellen Zerfalls der $ 2s\rangle$ -PL in Abhängigkeit der THz-Feldstärke. . . .	83
5.11	Zeitlicher Verlauf der PL-Intensität des $ 1s\rangle$ -Zustandes.	84
5.12	Zeitlicher Verlauf der differentiellen PL-Intensität . . .	84
5.13	Zeitlicher Verlauf der PL-Intensität bei der Energie des $ 1s\rangle$ -Exzitons . . . . .	88
5.14	Konversionseffizienz des THz-induzierten Übergangs $ 1s\rangle \rightarrow$ $ 2s\rangle$ in Abhängigkeit der optischen Anregungsdichte. .	90
5.15	Konversionseffizienz des THz-induzierten Übergangs $ 2s\rangle \rightarrow$ $ 1s\rangle$ in Abhängigkeit der optischen Anregungsdichte. .	91
5.16	Rabi-flopping aus dem $ 2s\rangle$ -Zustand . . . . .	93
5.17	Rabi-flopping aus dem $1s$ -Zustand . . . . .	94
5.18	Spektraler Verlauf der PL-Intensität bei resonanter NIR- Anregung . . . . .	96
5.19	PL-Intensität bei der Energie des $ 1s\rangle$ - Exzitons in Ab- hängigkeit von der THz-Leistung bei gleichzeitiger NIR- und THz-Anregung . . . . .	97

5.20 PL-Intensität bei der Energie des $ 1s\rangle$ Exzitons in Abhängigkeit von der optischen Anregungsenergie bei gleichzeitiger NIR- und THz-Anregung . . . . .	99
5.21 PL Intensität bei der Energie des $ 1s\rangle$ - Exzitons in Abhängigkeit von der Energie der NIR-Photonen bei gleichzeitiger THz-Anregung . . . . .	100

# 1 EINLEITUNG

Unser unmittelbarer Lebensraum, die äußere Erdkruste, besteht zu über 25 % aus dem Halbleiterelement Silizium. Im Grunde umgibt uns dieser Halbleiter seit Menschengedenken und stellt in Form von Sand eine wichtige Rohstoffquelle dar. Diese hat die Geschichte der Menschheit maßgeblich beeinflusst. Dennoch denken wir bei dem Wort Halbleiter sofort an die phantastischen elektronischen und elektrooptischen Errungenschaften die uns die vielseitigen Eigenschaften dieser Elemente im letzten Jahrhundert beschert hat.

Beginnend mit der Erfindung des Gleichrichters durch Karl Ferdinand Braun und der Entwicklung des ersten Transistors durch Julius Edgar Lilienfeld sind Halbleiter aus unserem modernen Leben wahrlich nicht mehr wegzudenken. Es fußt auf der Selbstverständlichkeit schwierige Arbeiten durch Computer und Roboter erledigt zu wissen, überall und zu jeder Zeit, drahtlos mit jedem Menschen kommunizieren zu können und von so vielen elektronischen Geräten umgeben zu sein, dass wir ihre hilfreichen Arbeiten gar nicht mehr wahrnehmen können.

Für die Entwicklung neuer Technologien war es immer notwendig, die grundlegenden Eigenschaften der zugrundeliegenden Materialien verstanden zu haben. Der kausale Zusammenhang, dass man vor der Entdeckung einer neuen Technologie nie wissen kann, welches grundlegende Wissen zu dieser führen wird, macht eine breitbandige und nicht immer zielführende Grundlagenforschung notwendig. In der Halbleitertechnologie umfasst dies zum Einen die Bereiche der elektronischen Eigenschaften und zum Anderen die optischen Eigenschaften der unterschiedlichen Halbleitersysteme. Insbesondere letztere erlangen durch neue technologische Entwicklungen in den Bereichen der

stromsparenden Lichterzeugung, der Miniaturisierung optoelektronischer Komponenten und der optischen Datenübertragung immer mehr an Bedeutung.

Einen besonderen Aspekt in den Materialeigenschaften von Halbleitersystemen stellen die optischen Eigenschaften der Exzitonen dar. Diese Quasiteilchen besitzen, mit Ihrer vermeintlich einfachen Struktur, ein diskretes Spektrum, vergleichbar mit dem des Wasserstoffatoms oder des Positroniums. Die Bindungsenergien befinden sich mit einigen meV jedoch weit unterhalb derer von Atomen. Die optischen Eigenschaften manifestieren sich demnach nicht im sichtbaren oder gar ultravioletten Spektrum, wie beim Wasserstoffatom, sondern im sogenannten THz-Bereich. Dieser Spektralbereich befindet sich, im Anschluss zur niederfrequenten Mikrowellenstrahlung, energetisch unterhalb des klassischen Infrarotbereichs. Der Frequenzbereich definiert etwa den Bereich von 100 GHz bis mehrere 10 THz - eine genaue Definition existiert nicht. Die Photonenenergie beträgt in diesem Bereich 0,4 meV bis 40 meV und liegt damit innerhalb der typischen Bindungsenergien exzitonischer Systeme. Durch die Spektroskopie im THz-Bereich gelang die Beobachtung des exzitonischen  $|1s\rangle - |2p\rangle$  Überganges [1, 2] sowie der kompletten exzitonischen Dynamik von der Bildung bis hin zur Relaxation und Ionisation [3, 4]. Eine THz-Verstärkung in exzitonischen Systemen kann durch eine initiale Besetzung des  $|2s\rangle$  Zustandes erreicht werden [5].

Verlässt man den Bereich der linearen Spektroskopie erhält man durch die Verwendung starker THz-Strahlung Zugang zu neuen Phänomenen wie den exzitonischen dynamischen Franz-Keldysh Effekt [6], die Beobachtung ponderomotoriver Kräfte und der Generation höherer THz-Harmonischer [7] sowie der stimulierten Emission aus exzitonischen Intradbandübergängen [8].

Es liegt nun nahe, weitere bekannte nicht-lineare optische Effekte atomarer Systeme auf das exzitonische System zu übertragen, um Analogien zu finden oder zu falsifizieren.

In dieser Arbeit wird hierzu der Aufbau und die Charakterisierung einer starken THz-Quelle beschrieben. Es können Feldstärken von  $> 40 \text{ kV}^{-1}$



bei einer Impulslänge von wenigen ps gezeigt werden.

Es werden verschiedene spektroskopische Experimente bei gleichzeitiger Anregung mit starken THz-Feldern an *(GaIn)As*-Quantenfilmproben durchgeführt. Mittels starker THz-Impulse werden Übergänge exzitonischer Systeme angeregt. Es wird eine Rabi-Oszillation zwischen dem  $|1s\rangle$  und  $|2p\rangle$  Zustand einer exzitonischen Polarisation initiiert, welche bei steigender Feldstärke zunehmend durch die Ionisation höherer Zustände überlagert wird. Durch eine schmalbandigen Anregung im THz-Frequenzbereich können exzitonische Zustände gezielt besetzt werden. Insbesondere wird ein eigentlich dipolverbotener, optischer Übergang nachgewiesen, welcher theoretisch durch die Vielteilchenwechselwirkung einer exzitonischen Population erklärt wird.



## 2 GRUNDLAGEN

Die in dieser Arbeit vorgestellten Untersuchungen zu exzitonischen Systemen in Halbleitern beinhalten grundlegende physikalische Phänomene, spezielle Phänomene der Halbleiterphysik und besondere Messtechniken, welche noch nicht zum Standardrepertoire eines physikalischen Labors gezählt werden können.

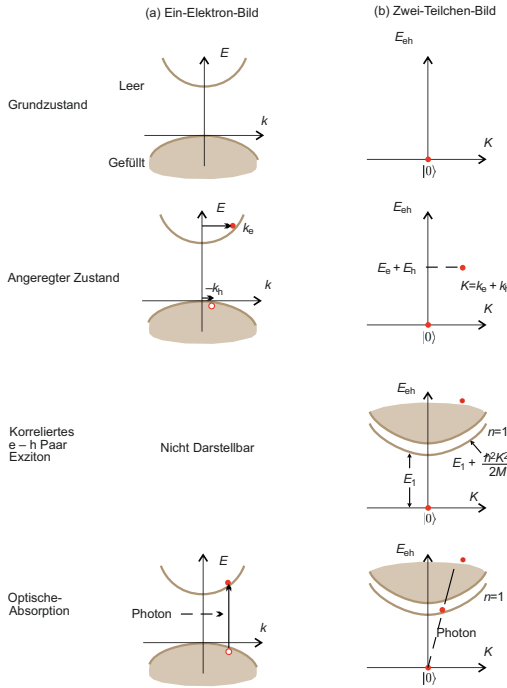
Im Folgenden soll auf Grundlagen dieser Inhalte eingegangen werden.

### 2.1 Exzitonen

Bei Exzitonen handelt es sich im klassischen Sinn um gebundene Elektronen-Loch-Zustände in Halbleitern oder Isolatoren. Dabei senkt die Coulomb-Wechselwirkung zwischen den beiden geladenen Teilchen die Energie des Zustandes etwas herab, weshalb dieser energetisch leicht unterhalb des Leitungsbandes liegt.

Da es sich bei Exzitonen um einen Zweiteilchenzustand handelt, ist die Darstellung in dem typischen Einteilchen-Bild nicht zutreffend. In Abbildung 2.1 sind Einteilchen- und Zweiteilchen-Bild gegenübergestellt, um diese Diskrepanz aufzuzeigen und das grundlegende Verständnis über die zu besprechenden Eigenschaften der Exzitonen zu schaffen. Die im Teilbild (a) gezeigten Schemata entsprechen der klassischen Einteilchen-Illustration des Halbleiters, wie sie oft in der Literatur angetroffen wird. Zu erkennen ist jeweils im unteren Bereich das Valenzband und oberhalb das Leitungsband. Ein angeregter Zustand wird

dabei stets als die Induktion eines Elektrons aus dem Valenzband in das Leitungsband illustriert. Das geschaffene Loch verbleibt im Valenzband. Im Zweiteilchen-Bild im Teilbild (b) wird der Grundzustand als  $|0\rangle$  oder  $|vac\rangle$  bezeichnet und liegt im Ursprung des E-k-Diagramms. Ein angeregter Zustand kombiniert die Energien und die Impulse der beiden beteiligten Teilchen. Nur in diesem Bild existiert der korrelierte Zustand des Exzitons. Das Spektrum des Exzitons kann in klassischer



**Abbildung 2.1** | Vergleich des klassischen ein-Teilchen-Bild (a) und dem Zwei-Teilchen-Bild (b) nach [9].

Näherung ähnlich wie das Spektrum des Wasserstoffatoms beschrieben werden. Dabei liegen die gebundenen Zustände mit der Hauptquantenzahl  $n=1, 2, 3, \dots$  sowie der Drehimpulsquantenzahl  $l=0, \hbar, 2\hbar$  vor. Die so genannten Kontinuumszustände beschreiben den klassischen

Fall des ionisierten Exzitons, in welchem das Elektron und das Loch zwar frei vorliegen, die Wellenfunktion jedoch immer noch durch die Coulomb-Kräfte beeinflusst ist. Durch Abschirmungseffekte der Exzitonen durch die Valenzelektronen - so genannte Screening-Effekte - ist die Bindungsenergie des Exzitons weitaus geringer als die des Wasserstoffatoms. Die Bindungsenergie bewegt sich zwischen einigen meV bis hin zu einigen 100 meV für  $ZnO$ .

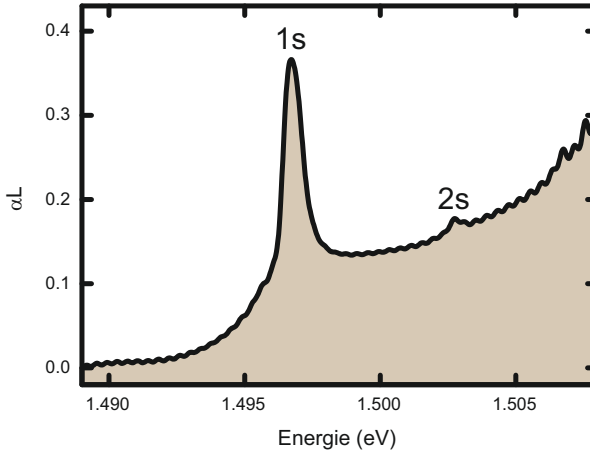
Der Wellenvektor des Exzitons ergibt sich im Zwei-Teilchen-Bild aus der Summe der Wellenvektoren der beteiligten Teilchen zu  $K = k_e + k_h$ , so dass die kinetische Energie  $E_{kin}$  für den Fall des freien Teilchens die parabolische Form  $E_{kin} = \frac{\hbar^2 K^2}{2M}$  - mit der reduzierten Masse  $M$  - annimmt.

Im optischen Spektrum werden die Exzitonenzustände durch deutliche Absorptionslinien unterhalb der Bandkante sichtbar. Durch die schwachen Bindungskräfte sind die Exzitonen in der Regel bei Raumtemperatur thermisch ionisiert, so dass qualitativ hochwertige Spektren nur in kryogenen Umgebungen von wenigen K zugänglich sind. Das in Abbildung 2.2 gezeigte Spektrum ist deshalb bei einer Probentemperatur von 10 K gemessen worden. Eine prominente Ausnahme bildet hier  $ZnO$ , welches durch die hohe Bindungsenergie auch schon bei Raumtemperatur klare exzitonische Absorptionslinien zeigt.

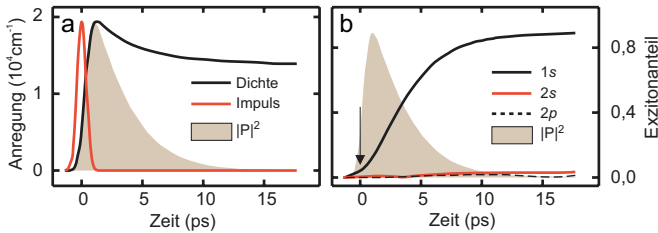
### 2.1.1 Exzitonbildung

Wird ein Halbleitersystem optisch angeregt, so bildet sich zunächst eine kohärente Polarisation innerhalb des Systems aus. Im Fall des Exzitons dephasiert diese Interbandpolarisation auf der Zeitskala von wenigen 10 ps. Ausschlaggebend für die Dephasierung sind sowohl strahlende wie auch anregungsinduzierte Prozesse [10].

Durch Coulomb-Streuprozesse bildet sich aus dieser anfänglichen Polarisation eine inkohärente Population aus Elektronen-Loch-Paaren. In Abbildung 2.3 ist das Aufkommen einer exzitonischen Population



**Abbildung 2.2** | Absorptionsspektrum  $\alpha L$  einer Ga(In)As-Quantenfilmprobe (DBR18) bei einer Proben­temperatur von 10K. Gut zu erkennen sind jeweils die Absorptionspeaks der  $|1s\rangle$ - bzw.  $|2s\rangle$ -Exzitonresonanz. Die Anhebung der Absorption energetisch oberhalb der  $|1s\rangle$ -Resonanz gegenüber dem niedrigeren Energiespektrum resultiert aus der Absorption des Substratmaterials. Durch die Überlagerung der Absorption des Substratmaterials ist die Bandkante nicht zu erkennen.



**Abbildung 2.3** | Resonante Anregung der  $|1s\rangle$ -Resonanz nach [10]. (a) Der zeitliche Verlauf der optischen Anregung (rot), der erzeugten optische Polarisation  $|P|^2$  (braun gefüllt) und der angeregten Ladungsträgerdichte. (b) Zeitlicher Verlauf der optisch induzierten Polarisation (braun gefüllt) und der jeweiligen resultierenden Population des  $|1s\rangle$ ,  $|2s\rangle$  und  $|2p\rangle$  Zustandes.

aus einer vorherigen Polarisation gezeigt. Zu erkennen ist wie die optisch induzierte anfängliche kohärente Polarisation innerhalb weniger ps dephasiert. Durch Streuprozesse bildet sich innerhalb weniger 10 ps aus dieser Polarisation eine inkohärente Population.

### 2.1.2 Vielteilchenwechselwirkung

Die zunächst sehr allgemeine und klassische Betrachtung der Exzitonen als einfaches Zweiteilchenproblem verliert unter bestimmten Bedingungen ihre Gültigkeit. Eine dieser Bedingungen kann z.B. durch eine starke Intersubbandanregung erfüllt werden. In diesem Fall verlieren die allgemeinen Annahmen eines geschlossenen Systems, analog dem des System des Wasserstoffatoms, ihre Gültigkeit. Der Grund liegt in der Vielteilchenwechselwirkung der Exzitonen im Halbleitersystem.

Für einen ausführlichen Einblick in die Theorie der Vielteilchenwechselwirkung in Halbleitersystemen sei der interessierte Leser auf [10, 11] verwiesen. Auf die für diese Arbeit relevante Coulomb-assistierte Streuung zwischen den s- und p-artigen Zuständen gleicher Hauptquantenzahl wird an dieser Stelle kurz eingegangen.

Betrachtet wird beispielhaft der Transfer in den  $|2s\rangle$ -Zustand nach einer resonanten interband-Anregung in den  $|2p\rangle$ -Zustand, wie er in [12] beschrieben ist. Die entscheidenden Eigenschaften der Exzitonen sind gegeben durch die Zweiteilchenkorrelation

$$c_X^{qkk} \equiv \Delta \langle e_k^\dagger h_{k-q}^\dagger h_{k'} e_{k'+q} \rangle. \quad (2.1)$$

Mit den entsprechenden Elektron- und Lochoperator  $e^\dagger e$  und  $h^\dagger h$ . Die Dynamik der Zweiteilchenkorrelation ergibt sich nach der Hauptsum-

mennäherung zu

$$\begin{aligned}
 i\hbar \frac{\partial}{\partial t} c_X^{qkk} &= E_{k,k',q}^{\text{eh}} c_X^{qkk} - \mathbf{A}_{\text{THz}}(t) \cdot \mathbf{j}_{k'+q-k} c_X^{qkk} \\
 &\quad + (1 - f_k^e - f_{k-q}^h) \sum_l V_{l-k} c_X^{q,k',l} \\
 &\quad - (1 - f_{k'+q}^e - f_{k'}^h) \sum_l V_{l-k'} c_X^{q,l,k} + T^{qkk}
 \end{aligned} \tag{2.2}$$

mit den entsprechenden Faktoren für die Elektronen- bzw. Lochverteilung  $f_k^e = \langle e_k^\dagger e_k \rangle$  ( $f_k^h = \langle h_k^\dagger h_k \rangle$ ), der renormalisierten Energie des Elektronen-Loch-Paars  $E_{k,k',q}^{\text{eh}}$ , dem Vektorpotential des anregenden THz-Impulses  $\mathbf{A}_{\text{THz}}(t)$ , dem Strom-Matrix-Element  $\mathbf{j}_k = -|e|\hbar k\mu$  und dem Coulomb-Matrix-Element  $V_k$ . Besonderes Augenmerk sei dabei auf den Term  $T^{qkk}$  gelegt. Dieser beschreibt die Drei-Teilchen-Korrelation und ist federführend für die p-s-Streuung verantwortlich. Dieser Term ist im allgemeinen sehr komplex und wird ausführlich in [10] beschrieben. Entscheidend ist die Tatsache, dass es den Exzitonen durch diesen Term erlaubt ist, in Zustände mit unterschiedlichen Drehimpulsen zu streuen, solange die Anzahl von  $c_X$  konstant bleibt.

## 2.2 Licht-Materie-Wechselwirkung

Die in dieser Arbeit gezeigten Untersuchungen zum Verständnis der Materialeigenschaften, basieren durchgehend auf die direkte oder indirekte Beobachtung der Licht-Materie-Wechselwirkung. Insbesondere in Halbleitersystemen können diese Wechselwirkungsprozesse eine komplexe Gestalt annehmen, weshalb im folgenden grundlegende Eigenschaften erläutert werden. Eine weiterführende grundlegende und erweiterte theoretische Einführung ist in [10, 11] zu finden.



### 2.2.1 Licht-Materie-Wechselwirkung von Halbleitersystemen

Durch die periodisch-kristalline Struktur von Halbleiterproben ergeben sich gewisse Randbedingungen, welche die Beschreibung der Licht-Materie-Kopplung sehr erleichtert. Jedoch zeigt sich wiederum, dass durch die Kopplung der Ladungsträger - positiv geladene Löcher und negativ geladene Elektronen - untereinander und an das Gitter selbst eine einfache Beschreibung meist doch nicht ausreichend ist. Die durch eine mikroskopische Vielteilchentheorie gefundenen Vorhersagen beschreiben die experimentell gefundene Dynamik in aller Regel hinreichend genau und zeigt vielfach Phänomene auf, welche sich ausschließlich durch eine Vielteilchendynamik erklären lassen.

Das System wird durch den Hamiltonoperator  $H_{sys}$  beschrieben

$$H_{sys} = H_0 - H_C - H_D - H_P, \quad (2.3)$$

wobei  $H_0$  den nicht wechselwirkenden Anteil des Ladungsträger-Photon-Phonon-Systems beschreibt. Die Coulomb-Wechselwirkungen werden mit  $H_C$ , die Dipolwechselwirkung zwischen Licht und Materie mit  $H_D$  und die Phonon-Wechselwirkungen mit  $H_P$  beschrieben. Die große Menge an beteiligten Teilchen eines realen Systems und die sich daraus ergebende unendliche Hierarchie an Lösungen lässt sich durch eine geschickte Entwicklung des Gleichungssystems in eine Reihe bewältigen. Diese als "cluster expansion" bekannte Methode ist in der Quantenchemie seit langem bekannt und bewährt und zeigt ihre gute Anwendbarkeit auch in der Halbleiter-Vielteilchen-Theorie. Ein wesentlicher Vorteil der Reihenentwicklung ist die Möglichkeit, die Reihe nach einer beliebigen Ordnung abbrechen zu können. So ermöglicht der Abbruch nach der ersten Ordnung die Beschreibung der sogenannten Singlet-Terme. Der Abbruch nach der zweiten Ordnung führt zu den sogenannten Doublet-Termen, welche die Zweiteilchenkorrelationen beschreiben. Diese Lösung ermöglicht bereits die Betrachtung von exzitonischen Effekten. Der Abbruch nach der dritten Ordnung führt er-

wartungsgemäß zur Beschreibung von Dreiteilchen-Wechselwirkungen, welche insbesondere bei der Erklärung der THz-Anregung eigentlich dipolverbotener Übergänge (Kapitel 5) benötigt werden.

### 2.2.2 Optische Kopplung

Die Beschreibung der Ankopplung des optischen Lichtfeldes an das Halbleitersystem gelingt über die Besetzungszahldarstellung. Die relevanten Größen der Polarisation  $P_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{v,c}$ , der Elektronenbesetzung  $f_{\mathbf{k}_{\parallel}}^e$  und der Lochbesetzung  $f_{\mathbf{k}_{\parallel}}^h$  werden über die jeweiligen Vernichter- und Erzeugeroperatoren  $a_{c,v,\mathbf{k}_{\parallel}}, a_{c,v,\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger}$  des Teilchens im Leitungsband ( $c$ ) oder Valenzband ( $v$ ) mit dem entsprechenden Impuls  $\mathbf{k}_{\parallel}$  dargestellt.

$$P_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{v,c} = \langle a_{v,\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} a_{c,\mathbf{k}_{\parallel}} \rangle, \quad (2.4)$$

$$f_{\mathbf{k}_{\parallel}}^e = \langle a_{c,\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} a_{c,\mathbf{k}_{\parallel}} \rangle, \quad (2.5)$$

$$f_{\mathbf{k}_{\parallel}}^h = \langle a_{v,\mathbf{k}_{\parallel}} a_{v,\mathbf{k}_{\parallel}}^{\dagger} \rangle. \quad (2.6)$$

Mittels der Heisenberg'schen Bewegungsgleichung leiten sich die sogenannten Halbleiter-Bloch-Gleichungen ab, welche in Doublet-Näherung die folgende Gestalt annehmen:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} P_{\mathbf{k}_{\parallel}} = \tilde{\epsilon}_{\mathbf{k}_{\parallel}} P_{\mathbf{k}_{\parallel}} - \left[ 1 - f_{\mathbf{k}_{\parallel}}^e - f_{\mathbf{k}_{\parallel}}^h \right] \Omega_{\mathbf{k}_{\parallel}} + \Gamma_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{v,c} + \Gamma_{v,c,\mathbf{k}_{\parallel}}^{QED}, \quad (2.7)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} f_{\mathbf{k}_{\parallel}}^e = 2Im \left[ P_{\mathbf{k}_{\parallel}} \Omega_{\mathbf{k}_{\parallel}}^* + \Gamma_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{c,c} + \Gamma_{c,c,\mathbf{k}_{\parallel}}^{QED} \right], \quad (2.8)$$

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} f_{\mathbf{k}_{\parallel}}^h = 2Im \left[ P_{\mathbf{k}_{\parallel}} \Omega_{\mathbf{k}_{\parallel}}^* - \Gamma_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{v,v} - \Gamma_{v,v,\mathbf{k}_{\parallel}}^{QED} \right] \quad (2.9)$$

Hier eingefügt ist die renormalisierte Übergangsenergie  $\tilde{\epsilon}_{\mathbf{k}_{\parallel}}$ , welche den energetischen Abstand der betrachteten Bänder unter Berücksichtigung der zwischen den angeregten Ladungsträgern auftretenden Coulombwechselwirkung zusammenfasst. Das optische Feld  $\mathbf{E}(o, t)$  ist

in der verallgemeinerten Rabi-Frequenz  $\Omega_{\mathbf{k}_{\parallel}}$  zusammengefasst

$$\tilde{\epsilon}_{\mathbf{k}_{\parallel}} = \epsilon_{\mathbf{k}_{\parallel}}^c - \epsilon_{\mathbf{k}_{\parallel}}^v - \sum_{\mathbf{k}'_{\parallel}} V_{\mathbf{k}_{\parallel}-\mathbf{k}'_{\parallel}} \left( f_{\mathbf{k}'_{\parallel}}^c + f_{\mathbf{k}'_{\parallel}}^h \right), \quad (2.10)$$

$$\Omega_{\mathbf{k}_{\parallel}} = d_{c,v} \langle \mathbf{E}(0, t) \rangle + \sum_{\mathbf{k}'_{\parallel}} V_{\mathbf{k}_{\parallel}-\mathbf{k}'_{\parallel}} P_{\mathbf{k}'_{\parallel}} \quad (2.11)$$

Der in der Douplet-Näherung auftretende quantenoptische Korrelationsterm  $\Gamma_{v,v,\mathbf{k}_{\parallel}}^{QED}$  und die mikroskopischen Streuterme  $\Gamma_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{v,v}$ ,  $\Gamma_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{c,c}$  und  $\Gamma_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{v,c}$  beschreiben die Zweiteilchenwechselwirkungen. Diese beinhalten unter anderem die exzitonischen Effekte, Dephasierungseffekte, die Ladungsträgerrelaxation und Abschirmungseffekte.

Bis jetzt wurden ausschließlich die Eigenschaften des Halbleitersystems ohne äußere Einwirkung beschrieben. Für die Kopplung an ein äußeres elektromagnetisches Feld reicht oft eine selbstkonsistente Kopplung der Halbleiter-Bloch-Gleichungen an die Maxwell'schen Gleichungen aus. Dieser Ansatz beschreibt z.B. die gemessene Transmission einer Probe. Bei einem senkrechten Einfall des Lichts auf die Probe ergeben sich folgende Gleichungen:

$$\left[ \frac{\partial^2}{\partial r_{\perp}^2} - \frac{n^2(r_{\perp})}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] \langle E(r_{\perp}, t) \rangle = \mu_0 |\xi(r_{\perp})|^2 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}, \quad (2.12)$$

$$\mathbf{P} = \frac{d_{vc}}{S} \sum_{\mathbf{k}_{\parallel}} P_{\mathbf{k}_{\parallel}} + c.c.. \quad (2.13)$$

Sie enthalten den wohl bekannten optischen Brechungsindex  $n$  des Halbleitermaterials in Ausbreitungsrichtung, das klassische elektrische Feld  $E(r_{\perp}, t)$  und das Betragsquadrat der Einhüllenden der Wellenfunktion  $\xi(r_{\perp})$ . Dem gegenüber steht die makroskopische Polarisation  $\mathbf{P}$  welche an das elektrische Feld koppelt. Die makroskopische Polarisation setzt sich aus der Summe der einzelnen Singlet-Terme  $\mathbf{k}_{\parallel}$  und dem konjugiert Komplexen und der Quantisierungsfläche  $S$  zusammen.

Der bis jetzt entwickelte Ansatz beschreibt die lineare optische Transmission hinreichend. Der Einfluss eines zusätzlichen THz-Feldes ist in

diesem Ansatz noch nicht erfasst. Durch eine einfache Substitution im Hamiltonoperator gelingt dies und man erhält die Bewegungsgleichung für  $P_k$ :

$$\begin{aligned} i\hbar \frac{\partial}{\partial t} P_{\mathbf{k}_{\parallel}} &= \left( \tilde{\epsilon}_{\mathbf{k}_{\parallel}} - j_{\mathbf{k}_{\parallel}} \mathbf{A}_{THz} + \frac{|e|^2}{2\mu} \mathbf{A}_{THz}^2 \right) \\ P_{\mathbf{k}_{\parallel}} - \left( 1 - f_{\mathbf{k}_{\parallel}}^e - f_{\mathbf{k}_{\parallel}}^h \right) \Omega_{\mathbf{k}_{\parallel}} &+ \Gamma_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{v,c} + \Gamma_{v,c,\mathbf{k}_{\parallel}}^{QED}, \end{aligned} \quad (2.14)$$

mit der renormalisierten kinetischen Energie der Ladungsträger  $\tilde{\epsilon}_{\mathbf{k}_{\parallel}}$ . Der induzierte Strom  $j_{\mathbf{k}_{\parallel}} \mathbf{A}_{THz}$  ergibt sich aus dem Vektorpotential des THz-Feldes  $\mathbf{A}_{THz}$  und dem entsprechenden Dipolmatrixelement  $j_{\mathbf{k}_{\parallel}}$ . Der Term  $\frac{|e|^2}{2\mu} \mathbf{A}_{THz}^2$  beschreibt die auftretenden ponderomotiven Ströme. Dieser Term erhält insbesondere bei der Betrachtung starker THz-Felder große Bedeutung. Zwar tritt dieser Term prinzipiell auch bei der optischen Anregung auf, jedoch sind die Ladungsträger zu träge, um dem Feld folgen zu können. Deshalb kann dieser Term in der Regel vernachlässigt werden. Bei der Anregung mit einem langsam oszillierenden THz-Feld folgen die Ladungsträger dem Feld periodisch und durch die starke asymmetrische räumliche Verteilung typischer, kurzer THz-Impulse treten zusätzliche Kräfte auf, die bei einer rein optischen Anregung nicht zu beobachten sind.

Der zweite Term beschreibt vornehmlich Effekte wie optische Verstärkung und Ausbleichen durch die Pauli-Blockade. In ihn fließen der Phasenraumfüllfaktor

$\left( 1 - f_{\mathbf{k}_{\parallel}}^e - f_{\mathbf{k}_{\parallel}}^h \right)$  mit den Einteilchenverteilungen  $f_{\mathbf{k}_{\parallel}}^{e,h}$  und die verallgemeinerte Rabi-Frequenz  $\Omega_{\mathbf{k}_{\parallel}}$  ein. Der letzte Term beschreibt die Vielteilchenkorrelationen.

Dies bildet die Grundlagen für die Beschreibung des kombinierten E-Feldes

$$\left[ \frac{\partial^2}{\partial r_{\perp}^2} - \frac{n^2(r_{\perp})}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] \langle E(r_{\perp}, t) \rangle = \mu_0 |\xi(r_{\perp})|^2 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}_{opt} \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{J}_{THz} \quad (2.15)$$

## 2.3 Experimentelle Grundlagen

Die Dynamik der zu untersuchenden Systeme und deren Wechselwerkeigenschaften bestimmt die möglichen Untersuchungsmethoden, die verwendet werden können. Die dynamischen Prozesse, die zu beobachten sind, reichen dabei von wenigen 10 fs bis hin zu mehreren 100 ns. Die zu untersuchenden Licht-Materie-Wechselwirkungen können sehr direkt z.B. in einer Änderung der Absorption oder indirekt, wie bei der Photolumineszenz, manifestiert sein. Die verwendeten Methoden und Experimente werden im Folgenden kurz vorgestellt.

### 2.3.1 Anrege-Abfrage-Spektroskopie

Die Anrege-Abfrage-Spektroskopie ist sehr flexibel in der zur Verfügung stehenden temporären Dynamik. Es können sowohl sehr kleine Zeitabschnitte von wenigen fs beobachtet werden, wie auch sehr langsame Dynamiken von mehreren ns. Grundlage für diese Art von Experimenten bildet das synchronisierte Anregen und Abfragen eines Systems mittels zweier aufeinanderfolgenden optischen Impulse (prinzipiell können auch mehr als zwei aufeinander folgende Impulse, je nach Anwendungsfall, verwendet werden), welche durch die Probe propagieren und / oder an dieser reflektiert werden. Der zeitliche Abstand zwischen der Anregung und der Abfrage ist variabel und kann gezielt mit einer Genauigkeit von wenigen fs eingestellt werden. Die Dynamik eines Systems wird durch schrittweises Verändern des zeitlichen Abstandes zwischen den beiden optischen Impulsen erfasst. Dabei beschreibt der Abfrage-Impuls jeweils die Wechselwerkeigenschaften des Systems während des Zeitpunktes nach der Anregung des Systems, der durch den Abstand der beiden optischen Impulse definiert ist. Für die genaue Charakterisierung des propagierten Abfrage-Impulses werden die einzelnen spektralen Komponenten mittels eines

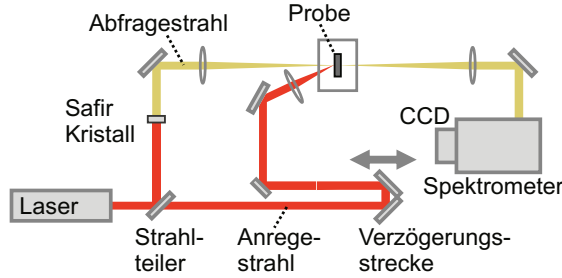
optischen Spektrometers auf einem Zeilendetektor abgebildet und vermessen. Der in Abbildung 2.4 dargestellte Aufbau stellt ein klassisches Anrege-Abfrage-Experiment dar.

Ein gepulstes Lasersystem dient als Lichtquelle.

Das Laserlicht wird mittels eines Strahlteilers in zwei Anteile aufgeteilt. Der eine Anteil repräsentiert den Anrege-Impuls der Andere den Abfrage-Impuls. Entscheidend bei diesem Aufbau ist die zeitliche Synchronität der beiden Impulse, welche trivialer Weise durch das Aufteilen eines Impulses mittels des Strahlteilers in zwei Anteile gegeben ist. Die Verzögerung der beiden aufgeteilten Impulse gegeneinander erfolgt durch die Veränderung der optischen Wegstrecke eines Impulses gegenüber dem anderen. Denkbar sind hier unterschiedliche Methoden zur Impulsverzögerung [13, 14, 15], die hier verwendete und gängigste Methode ist die Veränderung der optischen Weglänge durch die Veränderung der geometrischen Weglänge mittels eines linearen Verschiebetisches. Der optische Impuls wird dabei auf ein, auf dem Verschiebetisch angebrachten Retroreflektor gelenkt, welches/r den optischen Impuls wieder zurückreflektiert. Durch das Verschieben des Retroreflektors entlang des Verschiebetisches lässt sich die optische Wegstrecke variieren. Aus dem Abfragestrahl wird in einem Saphirkristall ein Superkontinuum-Weißlicht mit einer spektralen Bandbreite von mehreren 100 nm generiert. Beide Strahlengänge werden unter unterschiedlichen Winkeln auf die Probe fokussiert, damit die beiden Strahlen nach dem Passieren der Probe leicht geometrisch voneinander getrennt werden können. Das transmittierte Abfragelicht wird über ein Gitterspektrometer auf eine CCD<sup>1</sup>-Kamera abgebildet. Der Abfragestrahl wird durch die Wechselwirkung mit der Probe sowohl an der Oberfläche teilweise reflektiert und teilweise absorbiert. Somit ergibt sich die normierte Transmission  $T$  der Probe aus der Absorption  $A$  und der Reflexion  $R$  der Probe zu  $T = 1 - R - A$ . Eine Anregung der Probe durch den Anregestrahl beeinflusst die Absorption wie auch die Reflexion an der Probe. Wobei die Änderung der Reflexion meist

---

<sup>1</sup>engl. Charge-coupled Device



**Abbildung 2.4** | Optischer Anrege-Abfrage-Spektroskopie Aufbau. Als Lichtquelle dient ein gepulster Laser mit einer Impulslänge von weniger als einer Pikosekunde. Der Laserstrahl wird über einen Strahlteiler in zwei Anteile aufgeteilt, dem Abfragestrahl und dem Anregestrah. Aus dem Abfragestrahl wird in einem Safir-Kristall ein Superkontinuum-Weißlicht mit einer spektralen Bandbreite von mehreren 100 nm generiert. Der Abfragestrahl wird auf die Probe fokussiert und der transmittierte Anteil durch ein Spektrometer auf einer CCD-Kamera abgebildet. Der Anregestrah wird über eine Verzögerungsstrecke abgebildet, um den zeitlichen Abstand der Impulse des Anregestrahls gegenüber denen des Abfragestrahls einstellen zu können. Der Anregestrah wird unter einem Winkel auf die Probe fokussiert, um möglichst wenig Streulicht des Anregestrahls zu detektieren.

vernachlässigt werden kann, da sie gering gegenüber der Änderung der Absorption ist. Eine Messung der Transmission in Brewster-Geometrie vermindert die Reflexionsverluste abermals, so dass die Änderung der Transmission  $\Delta T$  zu  $\Delta T = 1 - \Delta A$  genähert werden kann. Zu beachten ist natürlich immer, ob diese Näherung wirklich gerechtfertigt ist, da sie keine Allgemeingültigkeit besitzt. Allgemeingültig und häufig verwendet ist die Normierung der geänderten Transmission  $\Delta T$  auf die ungestörte Transmission  $T_0$  zu

$$\frac{\Delta T}{T_0}(\omega) = \frac{T_{pp}(\omega) - T_{p0}(\omega)}{T_{p0}(\omega)}, \quad (2.16)$$

wobei die Größen  $T_{pp}$  die gestörte Transmission bei zusätzlicher Anregung und  $T_{p0}$  die ungestörte Transmission ohne Anregung beschreiben. Es kann hilfreich sein, die Absorption einer Probe als Materialeigenschaft, den Absorptionskoeffizienten  $\alpha$  anzugeben. Nach dem Lambert-Beersches Gesetz ergibt sich für die ungestörte Transmission:

$$T_{p0}(\omega) = I_0(\omega)^{-\alpha(\omega)L} \quad (2.17)$$

und für die gestörte Transmission:

$$T_{pp}(\omega) = I_0(\omega)^{-(\alpha(\omega)+\Delta\alpha(\omega))L}. \quad (2.18)$$

Aus dem Quotienten der beiden Formeln 2.17 und 2.18 resultiert:

$$\Delta\alpha L(\omega) = -\ln\left(\frac{T_{pp}(\omega)}{T_{p0}(\omega)}\right). \quad (2.19)$$

Die Größe  $\Delta\alpha L$  eignet sich insbesondere für die Angabe bei niederdimensionalen Objekten, wie Quantenfilmen, bei denen eine Längendefinition nicht sinnvoll ist. Eine reale Messung dieser Größen ist immer mit gewisse störende Einflüsse behaftet. Diese sind z.B. die Hintergrundbeleuchtung im Labor, das Streulicht der Anregung, die Photolumineszenz durch die Anregung und die Charakteristik des verwendeten Sensors nebst Auswertelektronik. Um diese Einflüsse bestmöglich zu kompensieren, werden zu jeder Messung die einzelnen störenden Einflüsse separat gemessen, um das eigentliche Transmissionssignal zu korrigieren. Mit den separaten Messgrößen des Hintergrundsignals  $T_{bg}$  ohne Anrege- und Abfragelicht und dem Signal ohne Abfrage- mit Anregelicht  $T_{ps}$ , ergibt sich die korrigierte Größe:

$$\Delta\alpha L(\omega) = -\ln\left(\frac{T_{pp}(\omega) - T_{ps}(\omega)}{T_{p0}(\omega) - T_{bg}(\omega)}\right). \quad (2.20)$$

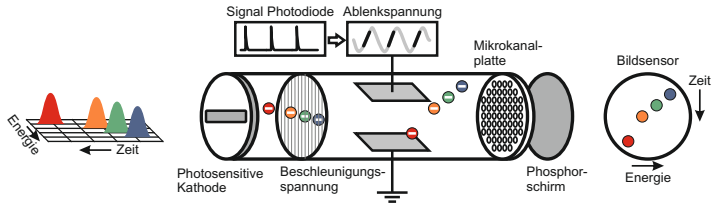
Diese Größe lässt sich sehr komfortabel mit einem Anrege-Abfrage-Experiment erfassen, da sich die benötigten Größen durch alternierendes Zu- und Abschalten der einzelnen Strahlwege, ohne dass die Probe bewegt werden muss, gewinnen lassen.



### 2.3.2 Photolumiszenzspektroskopie

Eine etablierte Methode zur Untersuchung von Halbleitereigenschaften ist die Photolumineszenzspektroskopie [16, 17]. Dabei wird die Dynamik der strahlenden Rekombination von Ladungsträgern beobachtet. Durch den temporalen Verlauf und die beobachteten Übergangsenergien lassen sich Rückschlüsse auf die internen Zustände der Halbleiterprobe schließen. Die in dieser Arbeit angestellten Photolumineszenzmessungen erfolgten mit Hilfe einer Streak-Kamera, auf dessen Funktionsweise im Folgenden kurz eingegangen werden soll.

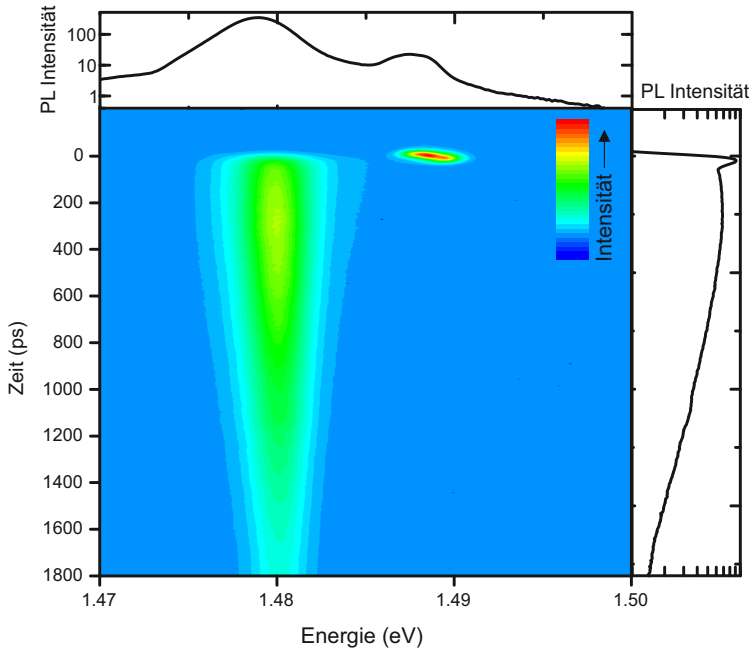
**Streak-Kamera** Typische Photolumineszenz-Zerfallszeiten in Halbleitern liegen im Bereich von einigen 100 ps bis zu mehreren  $\mu$ s. Um diese Zerfallszeiten zu messen, stehen mehrere Methoden zur Verfügung. Diese sind zum Beispiel die zeitkorrelierte Einzelphotonenzählung [18], oder die Messung mit einer Streak-Kamera. Die Messung mittels einer Streak-Kamera [19] ermöglicht sowohl eine hohe zeitliche Auflösung von wenigen ps, als auch eine spektrale Auflösung. In Abbildung 2.5 ist eine Streak-Kamera schematisch dargestellt.



**Abbildung 2.5** | Schematische Darstellung einer Streak-Kamera

Einer Streak-Kamera ist in der Regel ein optisches Spektrometer vorgeschaltet, welches durch optisch dispersive Elemente das eintreffende Licht in seine spektralen Anteile separiert. Die einzelnen spektralen Anteile werden auf eine photosensitive Kathode abgebildet, in welcher,

durch den äußeren Photoeffekt, freie Elektronen erzeugt werden, welche wiederum durch eine Beschleunigungsspannung in einer Vakuumröhre beschleunigt werden. Über ein elektrisches Wechselfeld, das senkrecht zur Flugbahn der Elektronen und senkrecht zur spektralen Abbildungsebene angelegt ist, wird die Flugbahn der Elektronen moduliert. Dabei erfahren die Elektronen eine Ablenkung die proportional zur momentan vorherrschenden Feldstärke des Wechselfeldes ist. Durch die zeitliche Variation des Feldes ist die Stärke der Ablenkung abhängig von dem relativen Zeitpunkt, an welchem die Elektronen das Feld passieren. Die so nach Energie des Photons und Zeitpunkt des Eintreffens getrennten Elektronen werden in einer Mikrokanalplatte vervielfältigt und auf einen Phosphorschirm projiziert. Die durch die Elektronen ausgelöste Photolumineszenz des Phosphorschirms wird mittels einer CCD-Kamera aufgenommen. Die so erhaltende 2D-Matrix bildet auf der einen Achse die Wellenlänge bzw. Energie der Photonen ab und auf der anderen Achse den zeitlichen Verlauf. Ein Beispiel für eine Messung mit einer Streak-Kamera ist in Abbildung 2.6 dargestellt. Abgebildet ist die Photolumineszenzmessung einer (Ga, In)As/GaAs Quantenfilmstruktur. Zu erkennen ist bei der Zeit 0 ps und bei einer Energie von etwa 1,488 eV das Streulicht des für die Anregung verwendeten Laserimpulses. Die durch die optische Anregung erzeugten Elektronen-Loch-Paare relaxieren und rekombinieren unter anderem strahlend bei der Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons von etwa 1,48 eV. Im oberen Abschnitt ist das Integral über alle Zeiten dargestellt. In diesem Spektrum sind die beiden Energien, die der Anregung und die der strahlenden Rekombination bei der  $|1s\rangle$ -Exzitonen-Energie, gut zu erkennen. Links dargestellt ist der zeitliche Verlauf der Photolumineszenz summiert über alle Energien. Zu erkennen ist die hohe Intensität der Anregung bei der Zeit Null, ein Maximum der strahlenden Rekombination bei etwa 200 ps und ein anschließender näherungsweise exponentieller Abfall der Intensität.



**Abbildung 2.6** | Beispiel einer Typischen Photolumineszenz-messung mit einer Streak-Kamera.

### 2.3.3 Terahertzstrahlung

Das technisch relevante elektromagnetische Spektrum erstreckt sich von den in der Nachrichtenübertragung verwendeten Kilometerwellen ( $f = 10^3$  Hz) bis hin zur detektierbaren Höhenstrahlung mit einer Wellenlängen von nur wenigen Femtometern ( $f = 10^{23}$  Hz). Das Terahertz<sup>2</sup>-Spektrum bezeichnet dabei die elektromagnetische Strahlung mit einer Frequenz von  $f = 100$  GHz bis  $f = 10$  THz. Die Grenzen dieses Bereichs sind historisch gewachsen und teilweise technisch begründet. Das sich im unteren Frequenzbereich anschließende Spektrum wird

<sup>2</sup>Im weiteren THz abgekürzt

von der Hochfrequenzelektronik abgedeckt. Zu höheren Frequenzen schließt sich der Bereich des fernen Infrarots an, der durch optische Techniken erschlossen wird. Im Bereich des THz-Spektrums gab es bis in die 70er Jahre des 20. Jahrhunderts kaum geeignete Techniken zur Erzeugung gepulster Strahlung. Die meisten Technologien basierten auf der Abstrahlung eines Schwarzkörpers oder auf der Erzeugung langwelliger Strahlung mittels Moleküllaser. Diese „THz-Lücke“ wurde erst in den letzten 30 Jahren durch verschiedene Technologien geschlossen. So verwundert es nicht, dass sich gerade in den letzten Jahrzehnten sehr viele wissenschaftliche Arbeiten mit dem Thema THz beschäftigen. Angefangen von sehr grundlegenden Messungen, wie die Signatur des Urknalls innerhalb der kosmischen Hintergrundstrahlung [20, 21, 22], bis hin zu sehr industrienahen Anwendungen, wie die Detektion von Fremdstoffen in Lebensmitteln [23].

Da ein wesentlicher Teil der in dieser Arbeit verwendeten Methoden in der Verwendung von gepulster THz-Strahlung liegt, soll im folgenden detailliert auf die Erzeugung und Detektion dieser Strahlung eingegangen werden.

Die Licht-Materie-Wechselwirkung kann auf verschiedene Weisen beschrieben werden (2.2).

## **Terahertzspektroskopie**

Für die THz-Spektroskopie sind schwache und breitbandige Strahlungsquellen zu bevorzugen. Schwach meint in diesem Fall, so schwach dass der Zustand des Systems nicht bzw. nur minimal durch die Strahlung verändert wird. Es gibt mehrere Methoden diese Anforderungen an die Strahlungsquelle zu realisieren. Zu nennen sind dabei Schwarzkörperstrahler, Synchrotron-Strahlungsquellen, Quantenkaskadenlaser [24, 25, 26], Rückwärtswellenoszillatoren [27, 28], nicht-lineare Frequenzvervielfacher und THz-Generation mittels Photomischung [29]. Bei den genannten Quellen handelt es sich um Dauerstrichquellen (CW-

Quellen<sup>3</sup>), welche z.B. unter Verwendung von bolometrischen Fourier-Transformation-Spektrometern (FTIR) detektiert werden. Eine weitere Klasse von Quellen bilden die gepulsten Systeme. Diese werden meist mit gepulsten Laser-Systemen betrieben [30], welche gleichzeitig für die Detektion mittels Elektro-Optischer-Abtastung (Abschnitt 2.3.3) verwendet werden können. Zu nennende Quellen sind photoleitende Antennen mit kleiner und großer Apertur (Abschnitt 2.3.3), das Verfahren zur optischen Gleichrichtung in nicht linearen Kristallen (Abschnitt 3) und die Erzeugung von schmalbandigen THz-Impulsen in einem Freien-Elektronen-Laser (Abschnitt 2.3.3). Diese Quellen lassen sich sowohl als spektroskopische Quellen, wie auch als Quelle für die Anregung von Systemen verwenden.

### Starke Terahertzstrahlung

Wird der Zustand eines Systems direkt von dem eingestrahnten THz-Feld beeinflusst, wenn z.B. Intrabandübergänge in Halbleitern angeregt werden, kann von starker THz-Strahlung gesprochen werden. Hierbei liegen die Feldstärken des eingestrahnten Feldes innerhalb der Größenordnung der in der Materie vorliegenden interatomaren Feldstärken. Die auftretenden Feldstärken liegen im Bereich von mehreren kV/cm, die stärksten Quellen erreichen mehrere hundert MV/cm. Für die Erzeugung starker THz-Felder stehen verschiedene Technologien zur Verfügung, welche im Folgenden vorgestellt werden.

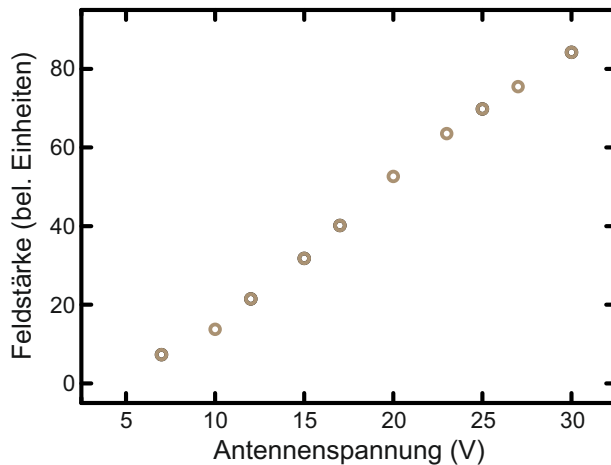
**Photoleitende Antennen mit großer Apertur** Eine etablierte Quelle für gepulste THz-Strahlung ist die Generation mittels photoschaltender Halbleiterantennen [31]. Dabei werden in einem semiisolierenden Halbleitermaterial durch einen Femtosekunden-Laserimpuls freie Ladungsträger generiert. Die Leitfähigkeit des Halbleiters erhöht sich

---

<sup>3</sup>CW - continuous waveform engl. für Dauerstrich

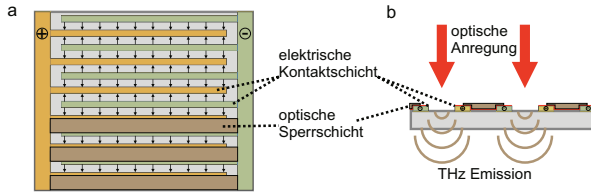
daraufhin schlagartig und es kann ein Strom zwischen zwei elektrisch vorgespannten Goldkontakten fließen. Die beschleunigten Ladungsträger erzeugen ein elektromagnetisches Feld im THz-Frequenzbereich. Durch die limitierte Anzahl an Ladungsträgern, die optisch generiert werden können, bevor die verwendete optische Leistung die Zerstörschwelle des Halbleiters überschreitet, liegt die erreichbare Feldstärke weit unterhalb von  $1\text{ kV/cm}$ . Höhere Feldstärken lassen sich mit photoleitenden-Antennen mit großer Apertur erreichen [32, 33, 34]. Dabei wird der Laser nicht auf einen kleinen Bereich fokussiert, sondern aufgeweitet, um den Halbleiter großflächig anzuregen. Um die erforderlichen Photonendichten an der Halbleiterantenne bereitstellen zu können, erfolgt die Anregung mittels eines Ti:Sa-Verstärker-Systems, welches Impulsleistungen im mJ Bereich generiert. In Abbildung 2.8 ist eine Halbleiter-Antenne mit großer Apertur dargestellt. Die Antenne besteht aus semiisolierendem GaAs, auf welchem lithographisch zwei elektrisch leitende, ineinandergreifende Kammstrukturen aufgebracht sind. Die Kammstrukturen sind abgeschlossen mit einer elektrischen Isolationsschicht. Jede zweite freiliegende Fläche zwischen den einzelnen Leitern ist mit einer Goldschicht optisch abgeschattet. An den beiden Kammstrukturen ist eine elektrische Spannung angelegt, sodass sich zwischen den einzelnen Zinken jeweils ein E-Feld mit alternierender Richtung ausbildet. Die Generation von freien Ladungsträgern im GaAs erfolgt bei optischer Anregung ausschließlich in den freiliegenden, nicht in den abgeschatteten Bereichen. Durch die anliegende elektrische Spannung erfolgt eine Beschleunigung der Ladungsträger entlang der Feldlinien des angelegten E-Feldes, welche zu einer Abstrahlung eines elektromagnetischen Impulses führt. Durch die Abschattung jeder zweiten Freifläche besitzen die beitragenden einzelnen Feldlinien makroskopisch eine ausgeprägte Richtung, so dass die einzelnen abgestrahlten elektromagnetischen Impulse im Fernfeld konstruktiv interferieren. Die erreichbare Feldstärke skaliert linear (Abbildung 2.7) mit der angelegten elektrischen Spannung. Somit ließen sich, zumindest theoretisch beliebig hohe Feldstärken generieren, indem man die Größe der angeregten Fläche und die ver-

wendete optische Anregungsleistung erhöht. Praktisch erweisen sich jedoch ab Feldstärken von  $> 100 \text{ kV/cm}$  nicht lineare Generationsprozesse, wie die optische Gleichrichtung 2.3.3, als effizienter. Das resultierende elektromagnetische-Fernfeld beschreibt nahezu einen einzelnen Sinus-Zyklus mit nur einem Nulldurchgang (Abbildung 2.9). Der THz-Impuls wird für die theoretische Betrachtung häufig durch eine monochromatische Cosinus-Welle mit einem Gauss-förmigen Amplitudenverlauf approximiert. Das dem THz-Impuls zugrundeliegende Frequenzspektrum überspannt mehrere Oktaven und liegt im Bereich von 0,2 THz bis 3,0 THz.



**Abbildung 2.7** | Feldstärke des THz-Impulses in Abhängigkeit von der anliegenden elektrischen Spannung an der Antenne.

**Photomischung** Die für die THz-Generation in Antennen verwendeten optischen Impulse fungieren ausschließlich für die Generation von Ladungsträgern, um die Antenne kurzzeitig leitend zu schalten. Die Charakteristik der erzeugten THz-Strahlung resultiert größtenteils aus den Parametern der verwendeten Antenne wie Abstrahlcharakteristik, Lebensdauer der Ladungsträger und angelegte elektrische Spannung.

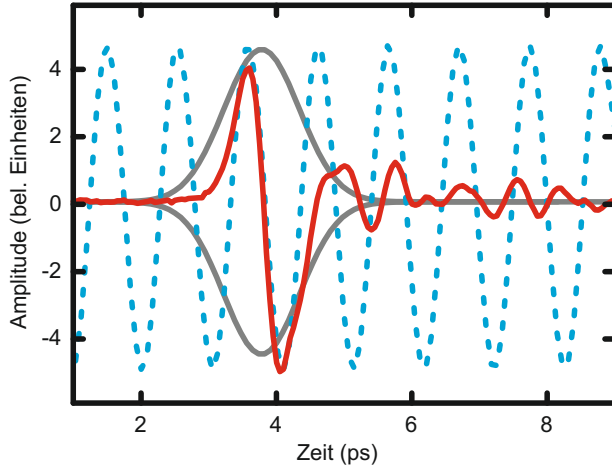


**Abbildung 2.8** | (a) THz-Antenne mit großer Apertur in Draufsicht. (b) THz-Antenne im Querschnitt.

Eine direkte Umwandlung der optischen Impulse in THz-Impulse findet nicht statt.

Eine Methode zur direkten Umwandlung beschreibt die Photomischung in Kristallen, insbesondere für die Generation von starken THz-Feldern, die Photomischung bzw. die optische Gleichrichtung in der Cherenkov-Geometrie. Die spektrale Bandbreite eines typischen optischen Femtosekundenimpulses liegt im Bereich von 10 nm - 60 nm. Dies entspricht einer Frequenzdifferenz von etwa 5 THz - 30 THz. Das bedeutet, dass die erzeugbaren Differenzfrequenzen eines Femtosekundenimpulses im THz-Frequenzbereich liegen. Eine gängige Methode für die Frequenzmischung im optischen Spektralbereich ist das Mischen in nicht-linearen Kristallen. Es existieren verschiedene Kristalltypen, die für die THz-Generation geeignet sind. Insbesondere die Materialien *ZnTe* und *LiNbO<sub>3</sub>* sind geeignete Kandidaten für eine effiziente Konversion. Die Konversionseffizienz des *LiNbO<sub>3</sub>*-Kristalls übersteigt die des *ZnTe*-Kristalls in etwa um den Faktor 5. Jedoch unterscheiden sich die Brechungsindizes des *LiNbO<sub>3</sub>*-Kristalls für das optische Regime  $n_{NIR}$  und den THz-Bereich  $n_{THz}$  um den Faktor 2. Das führt dazu, dass bereits nach einer kurzen Wegstrecke innerhalb des Kristalls die Phase der erzeugten THz-Strahlung der Phase des Laserimpulses nachläuft und sich die erzeugte THz-Strahlung kollinear zu optischen Anregung nicht konstruktiv überlagert. Dies führt zu einer kegelförmigen Abstrahlung unter einem Winkel zur optischen Achse. Eine punktförmige Abbildung dieser so erzeugten THz-Strahlung ist nur schwer möglich. Es zeigt sich jedoch, dass sich durch vorheriges Kippen der Phasen-





**Abbildung 2.9** | THz-Impuls (rot) der verwendeten *GaAs*-Antenne mit großer Apertur. In blau, gestrichelt ist die entsprechende monochromatische Cosinus-Welle gezeigt, welche mit dem grau gezeigten Amplitudenverlauf der Einhüllenden den THz-Impuls recht gut approximiert.

front des Laserimpulses die Abstrahlcharakteristik soweit beeinflussen lässt, dass die Abstrahlung asymmetrisch zu einer Seite des Kristalls erfolgt. Die Entwicklung einer abgewandten Geometrie für die THz-Generation in  $LiNbO_3$ -Kristallen ist Kapitel 3 beschrieben.

**Elektro-Optische-Abtastung** Für die Detektion von THz-Strahlung stehen unterschiedliche Technologien zur Verfügung. Zum Einen existieren verschiedene Detektoren, wie Bolometer [35], Pyrometer [36] und Golay-Zellen [37]. Zum Anderen existieren unterschiedliche Verfahren, um verschiedene Größen der THz-Strahlung, wie Intensität, Amplitude und Phase, zu vermessen. Das hier verwendete Verfahren der elektro-optischen Abtastung [38, 39, 40] zur Charakterisierung der THz-Impulse wird im Folgenden kurz vorgestellt.

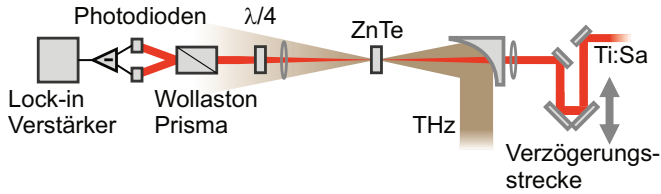
Ein wesentlicher Vorteil der Verwendung der elektro-optischen Abtas-

tung gegenüber rein leistungsintegrierender Methoden, ist der direkte Zugang sowohl zum zeitlichen Verlauf der Amplitude des E-Feldes als auch zum Verlauf der Phase. Dazu wird der durch einen Laser-Impuls erzeugte THz-Impuls mit einem zum erzeugenden Laser-Impuls kohärenten, abtastenden Laser-Impuls vermessen. Die Vorgehensweise ist sehr analog zum in Abschnitt 2.3 dargestellten Verfahren zur Vermessung der sich zeitlich ändernden Absorption mittels eines Anrege-Abfrage-Experiments.

Hierzu wird in einen elektro-optisch aktiven Kristall (z.B.  $ZnTe$ ) das zu vermessende THz-Feld fokussiert. Der kollinear verlaufende, abfragende Laser-Strahl erfährt in dem  $ZnTe$  Kristall gemäß dem Pockels-Effekt[41] eine Drehung seiner Polarisationsrichtung, proportional zum am Kristall anliegenden E-Feld. Das anliegende E-Feld wird durch die Feldstärke des eingestrahlten THz-Impulses beschrieben, welche zum Zeitpunkt des Eintreffens des optischen Abtastimpulses herrscht. Durch schrittweises Verfahren des zeitlichen Abstandes zwischen dem THz-Impuls und dem optischen Abtastimpuls wird das Feld des THz-Impulses abschnittsweise vermessen.

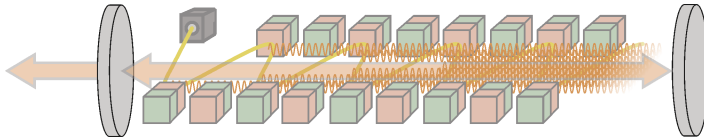
Um die relative Drehung der Polarisationsrichtung des Abtastimpulses zu bestimmen werden diese mit Hilfe eines Wollaston-Prismas in die beiden linearen, orthogonalen Anteile aufgeteilt und jeweils auf eine Photodiode fokussiert. Die beiden Photoströme werden durch einen Differenzverstärker (meist kombiniert mit einem Lock-In Verstärker) aufbereitet und vermessen. Der differentielle Photostrom ist proportional zum im Kristall vorliegenden THz-Feld zur Koinzidenz mit dem abtastenden Laser Impuls.

**Freie-Elektronen Laser** Bei einem Freien-Elektronen-Laser (FEL) [42, 43, 44] handelt es sich um keinen Laser im eigentlichen Sinn, da eine Besetzungsinversion in einem aktiven Lasermedium nicht vorliegt. Da die emittierte Strahlung jedoch hoch kohärent und monochromatisch ist und der Aufbau in einer Kavität sehr ähnlich dem eines Lasers ist, spricht man im allgemeinen von einem Laser.



**Abbildung 2.10** | Schematische Darstellung eines Aufbaus zur elektro-optischen Abtastung von THz-Impulsen.

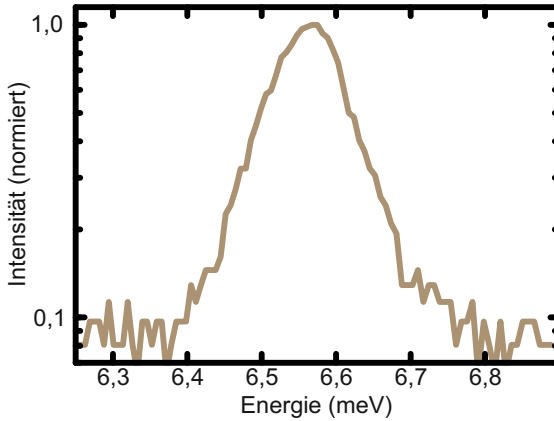
Grundlage für die Strahlungsemission eines FELs ist die Erzeugung kohärent überlagernder Synchrotronstrahlung. Diese wird durch die Ablenkung eines relativistischen Elektronenstrahls an mehreren, periodisch angeordneten Undulatoren erzeugt. Das in Abbildung 2.11



**Abbildung 2.11** | Schematische Abbildung eines Freien-Elektronen-Lasers für die Generation von starken THz-Impulsen.

dargestellte Schema eines FELs verdeutlicht das beschriebene Prinzip. Dabei ist zu beachten, dass die Dimensionen des FELs und die Geschwindigkeit der Elektronen so aufeinander abgestimmt sind, dass die an den Undulatoren erzeugte Strahlung jeweils mit der sich bereits in der Kavität des FELs befindenden Strahlung konstruktiv überlagert. Durch das Aufteilen des Elektronenstrahls in jeweils kleine scheibenförmige Pakete, deren Abstände auf die zu emittierende Wellenlänge abgestimmt sind, entsteht, durch so genagte Bunchingeffekte, hochgradig kohärente Strahlung mit einer sehr hohen Brillanz. Da die verwendeten freien Elektronen kein diskretes Energiespektrum besitzen, lässt sich mehr oder weniger beliebige elektromagnetische Strahlung, unter anderem auch im THz-Bereich, erzeugen. Der in dieser Arbeit ver-

wendete FEL FELBE <sup>4</sup> am Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf besitzt zusätzlich die Möglichkeit, die erzeugte Strahlung in kurzen Impulsen von etwa 30 ps zu emittieren. Die so erzeugten THz-Impulse besitzen eine maximale Feldstärke von einigen 100 kV/cm. Die spektrale Verteilung der Impulse ist entsprechend der für gepulste THz-Systeme sehr langen Impulspakete sehr schmalbandig (Abbildung 2.12). Das Spektrum besitzt eine Breite von etwa 0,1 meV bei einer mittleren Energie von 6,55 meV.



**Abbildung 2.12** | Energetisches Spektrum der verwendeten FEL-THz-Impulse. Das Spektrum besitzt eine mittlere Energie von etwa 6,55 meV bei einer Breite von etwa 0,1 meV.

### 2.3.4 Experimenteller Aufbau

In dieser Arbeit wurden zwei separate experimentelle Aufbauten verwendet. Für die Untersuchung der Dynamik exzitonicer Systeme in Kapitel 4 wurde ein Laboraufbau mit einem verstärkten Ti:Sa-Laser[45] als Lichtquelle verwendet. Für die gezielte Kontrolle exzi-

<sup>4</sup>Freie-Elektronen Laser (FEL) am Elektronen-Linearbeschleuniger mit hoher Brillanz und geringer Emittanz

tonischer Systeme in Kapitel 5 wurde ein Aufbau an dem Freien-Elektronen-Laser FELBE am Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf verwendet.

Die beiden Aufbauten unterscheiden sich grundlegend in der verwendeten Anregung und der verwendeten Detektionsmethode.

### **Ti:Sa Laser-Verstärker-System**

Ein wesentlicher Bestandteil der in dieser Arbeit vorgestellten Experimente bildet das verwendete Laser-Verstärkersystem [46]. Bei dem System handelt es sich um einen kommerziellen, verstärkten Ti:Sa Oszillator mit einer Impulsenergie von  $> 1$  mJ und einer Impulslänge von 120 fs. Die Repetitionsfrequenz des Systems liegt bei 1 kHz, die mittlere Wellenlänge beträgt 800 nm.

Für die Stabilisierung der Strahllage sind zwei aktiv geregelte Spiegel mit piezoelektrischen Aktuatoren direkt hinter dem Ausgang des Verstärkersystems verbaut. Die Kontrolle der Strahllage erfolgt über zwei ortsauflösenden Fotodioden, deren Messwerte die Grundlage für die aktive PID Regelung der Strahllage dienen. Für die temporale Verzögerung der einzelnen Impulse gegeneinander ist eine lange Verzögerungsstrecke [47] verbaut. Diese ermöglicht Verzögerungszeiten von  $> 8$  ns. Da die Strahllage durch die langen mechanisch gelagerten Wegstrecken über die Verzögerungsstrecke leicht variiert wird, ist an dieser Stelle eine weitere aktive Strahllagenregelung verbaut.

Für spektroskopische Untersuchungen ist eine Weißlichtgeneration verbaut, welche eine spektrale Bandbreite von  $> 500$  nm bereit stellt. Die Weißlichterzeugung erfolgt über Selbstphasenmodulation [48] in einem Saphir-Kristall.



gelegen sind.

Die verwendeten THz-Impulse werden in einer elektrisch vorgespannten GaAs-Antenne generiert und besitzen eine Länge von etwa 1 ps bei einer maximalen Feldstärke von etwa 15 kV/cm (Abschnitt 2.3.3). Die Probe befindet sich in einem mit  $^4\text{He}$ -gekühlten Tieftemperaturkryostaten, welcher minimale Proben Temperaturen von bis zu 4 K ermöglicht. Durch eine integrierte elektronische Heizung lässt sich die Temperatur beliebig im Bereich von etwa 4 K bis 400 K einstellen.

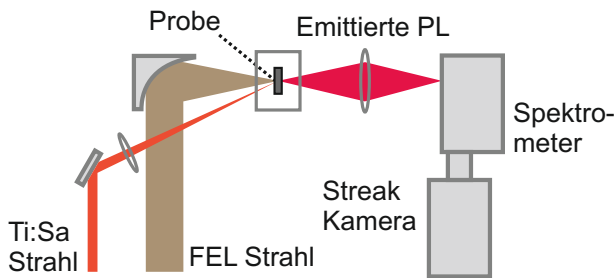
Die in der Antenne generierte THz-Strahlung wird mittels eines parabolischen Spiegels kollimiert und mittels eines weiteren parabolischen Spiegels in die Probe fokussiert. Das Weißlicht wird kollinear zum THz-Strahl mittels einer Linse durch ein kleines Loch in dem fokussierenden parabolischen Spiegel ebenfalls in die Probe fokussiert. Die Detektion des transmittierten Weißlichtes erfolgt spektral aufgelöst in einem Gitterspektrometer mit einer Auflösung von 0,014 nm mit Hilfe eines Peltier-gekühlten *InSi*-Flächen-, bzw. eines mit flüssigem Stickstoff gekühlten (*Ga, In*)*As*-Zeilendetektors. Für die Charakterisierung der THz-Strahlung wird die transmittierte Strahlung über zwei weitere parabolische Spiegel zu einem elektro-optischen-Abtast-Aufbau geführt. Die Verzögerung der THz-Impulse gegenüber der optischen Impulse erfolgt über die Änderung der optischen Weglänge. Die mittlere THz-Leistung wurde mit einer Golay-Zelle gemessen. Die Feldstärke wurde aus der gemessenen Impulsform, der mittleren Leistung und der gemessenen Brennfleckgröße [52] bestimmt.

### Optische-Anrege - THz-Anrege - Photolumineszenzaufbau

Ein weiterer experimenteller Aufbau wurde in den Laboren des Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf realisiert. Hier stand als THz-Quelle ein Freier-Elektronen-Laser zur Verfügung. Ziel des Experimentes war die Generation von exzitonischen Polarisierungen und Populationen und die anschließende Manipulation dieser mittels eines THz-Impulses. Für

die Messung der exzitonischen Besetzung des Systems wurde die strahlende Rekombination der Ladungsträger mit einer Streak-Kamera aufgenommen. Der experimentelle Aufbau ist in Abbildung 2.14 schematisch dargestellt. Die Probe befindet sich in einem mit  $\frac{4}{2}\text{He}$ -gekühlten Tieftemperaturkryostaten. Mit Hilfe eines ps-Ti:Sa-Lasers wird in der Probe eine exzitonische Polarisation erzeugt. Das schmalbandige Spektrum der 3 ps langen Laserimpulse ermöglicht eine nahezu ausschließliche Anregung der exzitonischen Resonanz.

Der Ti:Sa-Laser ist elektronisch mit dem FEL synchronisiert. Um die Repititionsrate des Ti:Sa-Lasers auf die Repititionsrate des FELs von 13 MHz anzupassen, wurde ein "Pulsepicker" verwendet. Die Verzögerungszeit zueinander kann durch die Laufzeit des elektronischen Synchronisationssignals beliebig variiert werden. Die Anregung der Probe erfolgt fokussiert, wobei der THz-Fokus ( $200\text{ }\mu\text{m}$ ) etwa den 10fachen Durchmesser des Laser-Fokus ( $20\text{ }\mu\text{m}$ ) besitzt. Das emittierte Licht der Photolumineszenz wurde mittels einer Linse auf das Gitterspektrometer abgebildet und in einer Streak-Kamera zeitlich aufgelöst. Die Datenaufnahme des Zeit-Energy-Spektrums erfolgt mit einer CCD-Kamera.



**Abbildung 2.14** | Experimenteller Aufbau für die terahertz-optische-Photolumineszenzspektroskopie.



## 2.4 Proben

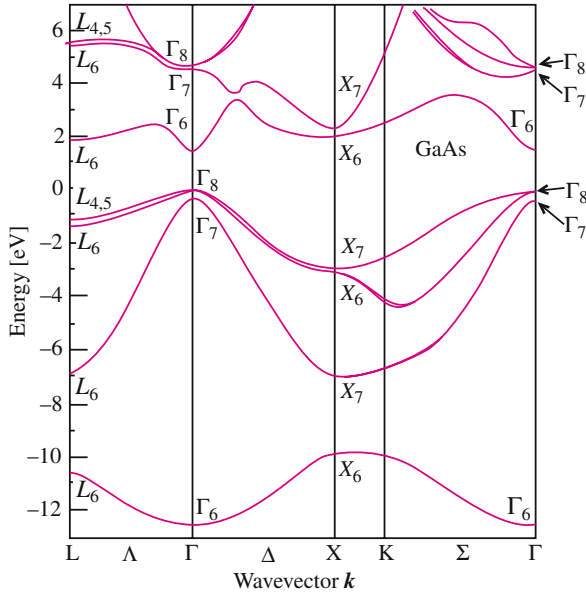
Als Proben kamen zwei unterschiedliche Quantenfilmproben zum Einsatz. Die Quantenfilme bestehen jeweils aus GaInAs und sind durch GaAs-Barrieren separiert. Die Filme sind auf einem GaAs Substrat gewachsen.

### 2.4.1 (Ga,In)As

Bei GaAs bzw. (Ga,In)As handelt es sich um direkte Verbindungshalbleiter der dritten und fünften Hauptgruppe des Periodensystems. Durch das Zusammentreffen des energetischen Maximums des Valenzbandes und dem energetischen Minimum des Leitungsbandes am  $\Gamma$ -Punkt (Abbildung 2.15), eignen sich diese Halbleiter besonders für optische Anwendungen. Durch Einstellen des Mischungsverhältnis zwischen Ga und In kann die Größe der Bandlücke bei Raumtemperatur von (Ga,In)As von etwa 0,4 eV (In,As) bis etwa 1,4 eV (Ga,As) eingestellt werden. Die Größe der Bandlücke wird zusätzlich noch von weiteren Parametern wie der Temperatur, Ladungsträgerdichte und Wachstumseigenschaften beeinflusst.

### Quantenfilmproben

Bei Quantenfilmen handelt es sich um sehr dünne Schichten Halbleitermaterial, deren Dicke in etwa der des Exziton-Bohrradius entspricht. Diese Schichten werden jeweils zwischen zwei Schichten eines Halbleitermaterials mit einer größeren Bandlücke eingebettet. Durch die räumliche Eingrenzung des Films ist das Energiespektrum in Wachstumsrichtung nicht kontinuierlich, sondern quantisiert, ähnlich eines Potentialtopfes. Die resultierende Zustandsdichte verläuft zwar wie



**Abbildung 2.15** | Berechnete Bandstruktur einer *GaAs*-Probe (aus [9]). Typisch für direkte Halbleiter liegt im  $\Gamma$ -Punkt das Maximum des Valenzbandes ( $\Gamma_{7,8}$ ) direkt über dem Minimum des Leitungsbandes ( $\Gamma_6$ ).

in einem Volumenhalbleiter in einer  $\sqrt{E}$ -Abhängigkeit, jedoch stufenförmig. Für die verwendeten Proben wurde nicht nur ein Quantenfilm, sondern mehrere übereinander gewachsen. Somit erhält man einen wesentlich größeren Wechselwirkungsquerschnitt, welcher den Signal-Rauschabstand einer Messung erhöht. Zu beachten ist natürlich, dass die einzelnen Quantenfilme möglichst identisch sein müssen. Die hier verwendeten Proben wurden mittels Molekularstrahlepitaxie hergestellt und sind von außerordentlicher Qualität.

### 2.4.2 Verwendete Proben

Es wurden zwei unterschiedliche (Ga,In)As/GaAs Quantenfilmproben verwendet. Für die Experimente zur exzitonischen Dynamik in Kapitel 4 wurde die Probe mit der Bezeichnung DBR13 verwendet. Für die Untersuchung der Kontrolle exzitonischer Systeme in Kapitel 5 wurde die Probe mit der Bezeichnung DBR42 verwendet.

#### DBR13

Bei der Probe mit der Bezeichnung DBR13 handelt es sich um 30 ( $Ga_{0,97}In_{0,03}$ )As-Quantenfilme, die jeweils durch eine Barrierschicht GaAs separiert sind. Die Probe ist von hervorragender Qualität und die einzelnen exzitonischen Resonanzen sind sehr schmal und energetisch gut separiert. In Abbildung 2.16 ist das Spektrum 1-T bei einer Temperatur von etwa 10 K dargestellt. Zu erkennen sind die einzelnen exzitonischen Zustände des  $|1s\rangle$ -Schwerlochübergangs, des  $|2s\rangle$ -Schwerlochübergangs und des  $|1s\rangle$ -Leichtlochübergangs. Durch die Absorption des verwendeten Substratmaterials kommt es zu einem Absorptionshintergrund der mit zunehmenden Energien größer wird.

#### DBR42

Bei der Probe mit der Bezeichnung DBR42 handelt es sich um 20 etwa 8 nm dicke  $Ga_{0,94}In_{0,06}$ As-Quantenfilme, die jeweils in eine etwa 130 nm dicke GaAs-Barrierschicht eingebettet sind. Auch hier sind die einzelnen exzitonischen Resonanzen sehr schmal und energetisch gut von einander separiert. In Abbildung 2.17 ist das 1-T Spektrum der Probe DBR42 dargestellt. Zu erkennen sind die einzelnen exzitonischen Zustände des  $|1s\rangle$ -Schwerlochübergangs, des  $|2s\rangle$ -

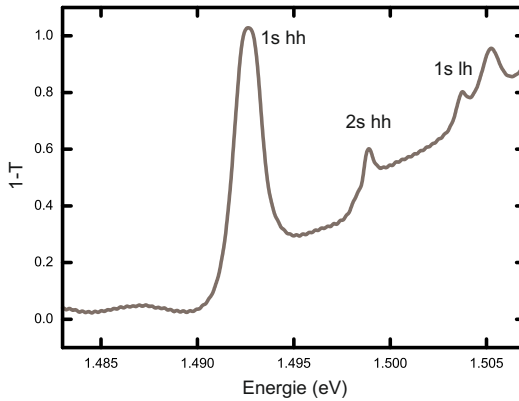


Abbildung 2.16 | Transmissionsspektrum der Probe DBR13.

Schwerlochübergangs und des  $|1s\rangle$ -Leichtlochübergangs. Durch die Absorption des verwendeten Substratmaterials kommt es zu einem Absorbtiionshintergrund der mit zunehmenden Energien größer wird.

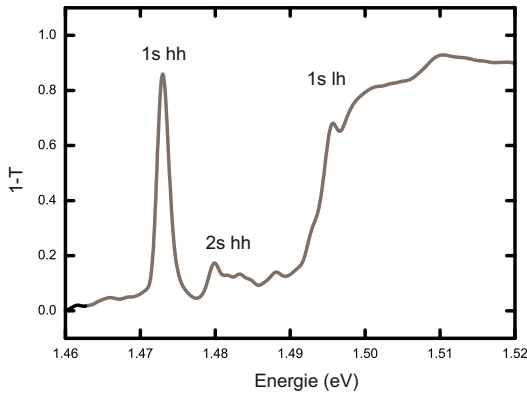


Abbildung 2.17 | Transmissionsspektrum der Probe DBR42.

# 3 AUFBAU ZUR ERZEUGUNG STARKER THz-IMPULSE IN EINER NEUARTIGEN CHERENKOV-GEOMETRIE

Für die in dieser Arbeit gezeigten Experimente war das Vorhandensein einer starken THz-Quelle von Nöten. Stark bedeutet in diesem Fall, dass sich mit dieser Quelle THz-Feldstärken im Bereich von mehreren kV/cm erreichen lassen und diese somit in der Größenordnung der interatomaren Felder typische Halbleiterproben liegen.

Zur Verfügung standen zu diesem Zweck eine *GaAs*-THz-Antenne (2.3.3) und der Freie-Elektronen-Laser FELBE am Helmholtz-Zentrum Dresden-Rossendorf (2.3.3). Eine weitere Möglichkeit zur Erzeugung von starken THz-Impulsen bietet die optische Gleichrichtung in *LiNbO<sub>3</sub>*-Kristallen (2.3.3).

Für die effiziente Nutzung dieser Generationsmethode wurde im Rahmen dieser Arbeit eine Quelle in einer neuen Cherenkovgeometrie entwickelt und vermessen.

## 3.1 Aufbau einer starken THz-Quelle in neuer Cherenkov-Geometrie

Die Generation von starken THz-Impulsen durch optische Gleichrichtung in

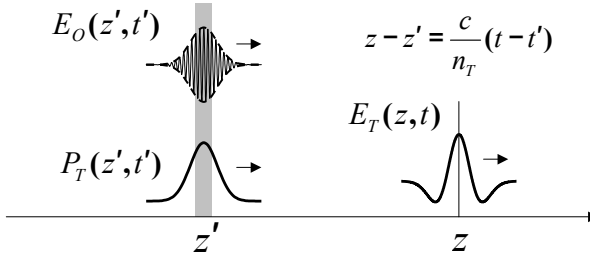
*LiNbO<sub>3</sub>* in der sogenannten Cherenkov-Geometrie ist ein etabliertes

Verfahren und in der Literatur hinreichend beschrieben [53, 54, 55, 56, 57, 58, 59, 60, 61].

Dabei wird die Eigenschaft starker optischer Felder ausgenutzt, nicht nur Polarisationen erster Ordnung in Materie zu induzieren, sondern auch signifikante Terme höherer Ordnung. Einer dieser Terme wird als „optical rectification“ bezeichnet, deren induzierte Polarisation beschrieben wird durch

$$P_{OR} = 2\epsilon_0\chi^{(2)}(0, w, -w)|E_0|^2, \quad (3.1)$$

wobei  $\chi^{(2)}(0, w, -w)$  die nichtlineare Suszeptibilität zweiter Ordnung bezeichnet. Dieser Term beschreibt die Induktion einer Polarisation entsprechend der Impulseinhüllenden der optischen Anregung. Bei den verwendeten Impulsen ist diese näherungsweise Gauss-förmig, was zu der in Abbildung 3.1 gezeigten makroskopischen Polarisation innerhalb des Kristalls führt, welche wiederum einen elektromagnetischen Impuls im THz-Spektrum abstrahlt. Allen Quellen gemein ist, dass

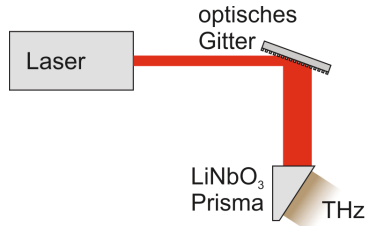


**Abbildung 3.1** | Zusammenhang zwischen eingestrahltm optischen Impuls, induzierter Polarisation und abgestrahltm THz-Feld (aus [62]). Das Gauss-förmige optische Wellenpaket  $E_O(z', t')$  erzeugt eine Polarisation  $P_T(z', t')$  entsprechend der Einhüllenden. Diese strahlt einen elektromagnetischen Impuls  $E_T(z, t)$  im THz-Spektrum ab.

durch die unterschiedlichen Gruppengeschwindigkeiten der optischen Anregung und der generierten THz-Strahlung eine kollineare Generation nur bedingt möglich ist [63]. Bereits nach einer kurzen Lauf-

strecke durch den Kristall würde sich das in dem Kristall befindende THz-Feld nicht mehr mit dem von dem optischen Impuls generierten Feld konstruktiv überlagern. Daraus resultiert eine Abstrahlung des THz-Feldes in einen nach vorne geöffneten Kegel, ähnlich wie bei der Generation von Cherenkov-Strahlung schneller Partikel in Kernreaktoren oder Beschleunigern [64, 65, 66].

Um dennoch eine möglichst punktförmiges und gerichtetes Abstrahlverhalten zu erhalten, wird bei THz-Cherenkov-Emmittern die Impulsfront des optischen Laserimpulses gegenüber der Ausbreitungsrichtung des Laserimpulses verkippt [67, 68, 69, 70]. Daraus resultiert ein in eine Richtung gerichtetes Abstrahlverhalten der THz-Strahlung, die durch den Kristall propagiert. Um die THz-Strahlung nun aus dem Kristall auszukoppeln, ist es nötig die Facette des Kristalls so auszurichten, dass die THz-Strahlung möglichst senkrecht auf die Oberfläche trifft (Abbildung 3.2). Andernfalls würde es durch den großen



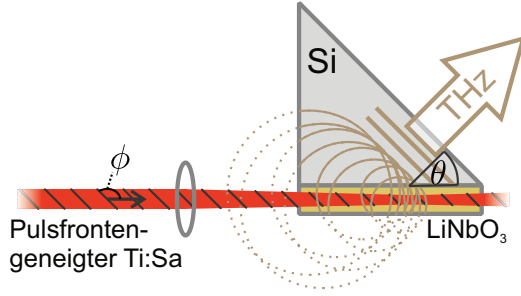
**Abbildung 3.2** | Konventioneller Aufbau für die Generation starker THz-Strahlung in Cherenkov-Geometrie (aus [57]). Die Impulsfront der optischen Anregung wird mittels eines Gitters gegenüber der Ausbreitungsrichtung gekippt. Hierdurch erfolgt die THz-Generation nicht konusförmig im Kristall, sondern näherungsweise punktförmig, gerichtet zu einer Seite. Die Propagationsstrecke der THz-Strahlung durch den Kristall ist relativ lang, weshalb größere Verluste durch Absorption innerhalb des Kristalls auftreten.

Unterschied zwischen dem Brechungsindex des Kristalls ( $n > 3$ ) und der umgebenden Luft ( $n \sim 1$ ) zu einer internen Totalreflexion kommen, welche das Auskoppeln der THz-Strahlung unterbinden würde. Durch diese spezielle Geometrie des Kristalls lässt sich die THz-Strahlung zwar effizient auskoppeln, jedoch erfährt die THz-Strahlung durch die lange Laufstrecke innerhalb des Kristalls große Absorptionsverluste bedingt durch den hohen Absorptionskoeffizienten des  $LiNbO_3$ -Kristall (Abbildung 3.2). Dieser lässt sich zwar durch kryogene Bedingungen reduzieren [71], jedoch ist der Betrieb einer kryogenen THz-Quelle bei Temperaturen von  $< 10\text{ K}$  sehr aufwändig und fehleranfällig. Um die Verluste durch eine reduzierte Laufstrecke durch den Kristall zu minimieren, wurde in dieser Arbeit eine abgewandelte Geometrie umgesetzt. Dabei erfolgt die THz-Generation gleichermaßen in einem  $LiNbO_3$ -Kristall durch Laser-Impulse mit gekippten Impulsfronten, jedoch wird die generierte THz-Strahlung nach einer sehr kurzen Propagation innerhalb des Kristalls in einen  $Si$ -Kristall-Prisma eingekoppelt. In Abbildung 3.3 ist die genaue Anordnung der Kristalle zueinander dargestellt. Die Einkopplung in den  $Si$ -Kristall erfolgt durch die ähnlichen Brechungsindizes von  $LiNbO_3$  und  $Si$  im THz-Spektralbereich ohne große Reflexionsverluste. Die Auskopplung erfolgt durch den Prismenschliff des  $Si$ -Kristalls senkrecht zur Oberfläche, mit relativ geringen Reflexionsverlusten an der Grenzschicht  $Si$ -Luft. Durch die wesentlich geringere Absorption des  $Si$  [72] im Vergleich zum  $LiNbO$  lässt sich durch diesen Lösungsansatz die Effizienz der THz-Generation durch optische Gleichrichtung steigern.

### 3.2 Kippwinkel der optischen Impulsfront

Die für die einseitige Generation von THz-Impulsen nötige Verkipfung der Wellenfront des optischen-Impulses erfolgt durch die Reflexion an einem Reflexionsgitter unter einem Einfallswinkel  $\alpha$ . Die Verkipfung





**Abbildung 3.3** | Experimenteller Aufbau für die THz-Generation mittels Photomischung in Cherenkov-Geometrie. Die Impulsfronten des Ti:Sa-Anregungsstrahls werden mittels eines optischen Gitters (hier nicht gezeigt) relativ zur Ausbreitungsrichtung um einen Winkel  $\phi > 90$  geneigt. Mittels einer Linse wird der Anregungsstrahl in den  $\text{LiNbO}_3$ -Kristall fokussiert. Durch die vorherige Neigung der Impulsfronten erfolgt die Abstrahlung der THz-Strahlung nur einseitig unter einem Winkel  $\theta$  zur Ausbreitungsrichtung zum Anregungsstrahl.

der Wellenfront  $\Phi_{grating}$  ergibt sich [73] durch

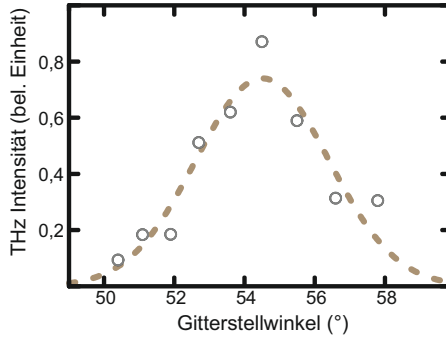
$$\Phi_{grating} = \lambda \frac{m}{d} \left( \cos \left( \arcsin \left( \frac{m\lambda}{d} - \sin(\alpha) \right) \right) \right)^{-1} \quad (3.2)$$

Jedoch nehmen auch die zusätzlichen optischen Elemente, wie Teleskope mit der Vergrößerung  $M$  oder die Refraktion an der Oberfläche des Kristalls mit dem Brechungsindex  $n_{opt}$ , Einfluss auf den Winkel zwischen Wellenfront und Ausbreitungsrichtung [73]:

$$\Phi_{total} = \arctan \left( \frac{1}{n_{opt} M} \tan(\Phi_{grating}) \right). \quad (3.3)$$

Durch diese Vielzahl an Parametern, welche zuweilen durch schlecht messbare bzw. bestimmbare physikalische Größen gegeben sind, lässt sich der Gitterstellwinkel zwar gut vorausberechnen, der optimale Winkel unter welchem die THz-Emmission maximal ist, muss jedoch durch systematisches Verstellen des Gitterwinkels gefunden werden. In Abbildung 3.4 ist die gemessene THz-Intensität in Abhängigkeit des Ein-

fallwinkels des optischen Anregeimpulses relativ zur Gitteroberfläche dargestellt. Zu erkennen ist ein Maximum der Intensität bei etwa  $54^\circ$ , was in etwa dem zuvor berechneten Einfallswinkel entspricht. Vergleichbare Resultate wurden bereits früher bei ähnlichen Geometrien erzielt [54].



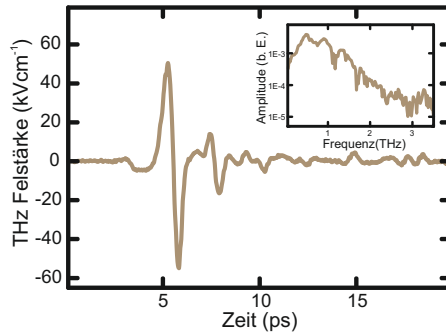
**Abbildung 3.4** | Abhängigkeit der generierten THz-Intensität von dem eingestellten Einstrahlwinkel auf das Gitter. Es zeigt sich ein Maximum der Intensität bei einem Winkel von etwa  $54^\circ$ . Die gestrichelte Linie dient zur Verdeutlichung des Verlaufs.

### 3.3 Impulsverlauf und Spektrum

Für die Verwendung der THz-Quelle für spektroskopische- bzw. Anwendungen im Bereich der nicht linearen Dynamik von Halbleitern, ist es von entscheidender Bedeutung, welche Impulscharakteristik die Quelle besitzt. Hier sind zum Einen die Impulslänge und die maximale Amplitude von großem Interesse - insbesondere für spektroskopische Zwecke ist zusätzlich die spektrale Bandbreite von großer Bedeutung. Der Amplitudenverlauf der erzeugten THz-Impulse wurde mittels elektro-optischer-Abtastung 2.3.3 vermessen [38, 74, 75, 76, 77]. Das Spektrum

wurde mittels einer schnellen Fourier-Transformation [78, 79, 80] aus den gemessenen Amplitudenverläufen berechnet. In Abbildung 3.5 ist der Amplitudenverlauf der generierten THz-Impulse dargestellt. Die angegebene Feldstärke wurde mittels einer Referenz-Leistungsmessung mit einer kalibrierten Golay-Zelle [81, 82] ermittelt. Der THz-Impuls beschreibt näherungsweise eine einzelne Sinus-Oszillation mit einer Halbwertsdauer von etwa 1 ps. Im Anschluss folgen einige abklingende Oszillationen mit deutlich geringerer Amplitude. Die maximale Feldstärke wurde zu 60 kV/cm bestimmt. Das dargestellte Spektrum im eingefügten Nebenbild besitzt eine Bandbreite von etwa 3 THz und entspricht damit den Erwartungen für einen Impuls mit nur wenigen einzelnen Oszillationen. Zu beachten ist, dass diese Bandbreite einem Frequenzverhältnis von mehreren Oktaven entspricht.

Die erreichte Feldstärke liegt innerhalb der gleichen Größenordnung bzw. eine Größenordnung unterhalb der Feldstärken anderer  $LiNbO_3$ -basierender Quellen[83].



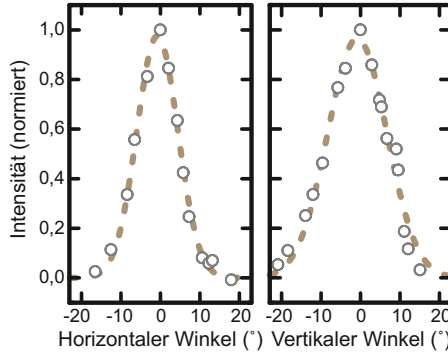
**Abbildung 3.5** | Amplitudenverlauf der generierten THz-Impulse. Der Impuls zeigt näherungsweise einen Hauptzyklus mit einigen in der Intensität deutlich schwächeren Nachzyklen. Das im Nebenbild dargestellte Spektrum wurde mittels einer schnellen Fourier-Transformation berechnet und zeigt eine Bandbreite von etwa 3 THz.

### 3.4 Abstrahlcharakteristik

Eine wesentliche Voraussetzung für die Erzeugung möglichst hoher Feldstärken ist die Möglichkeit die generierte THz-Strahlung auf einen möglichst kleinen Punkt fokussieren zu können. Dies erfolgt für gewöhnlich mittels Linsen oder parabolisch geformter Spiegel. Die minimale Größe des fokussierten Brennflecks ist jedoch unter anderem durch die Strahlqualität  $K = \frac{1}{M^2}$  vorgegeben. Bei einer idealen gaussförmigen TEM00 Mode erhalten die Größen  $M^2$  und  $K$  den Wert 1, welches die kleinstmögliche Brennfleckgröße ermöglicht, die sich beugungslimitiert in der Größenordnung der Wellenlänge befindet.

In Abbildung 3.6 ist die Intensität der divergenten THz-Strahlung in Abhängigkeit des Winkels zwischen Detektor und Strahlrichtung dargestellt. Unter einem Winkel von  $0^\circ$  trifft die Strahlung senkrecht auf das Detektorfenster. Zu erkennen ist eine nahezu gaussförmige Abhängigkeit der Intensität vom Detektorwinkel. Die gestrichelten Linien stellen jeweils eine angepasste Gaussfunktion zur Verdeutlichung dar. Die Halbwertsbreite sowohl der horizontalen wie auch der vertikalen Abstrahlcharakteristik liegt bei etwa  $13^\circ$ .

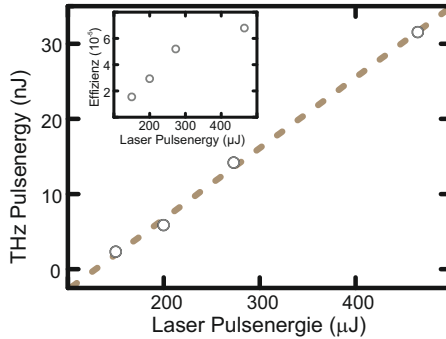
Aus dieser Messung lässt sich zwar noch keine quantitative Aussage über die tatsächliche Strahlqualität machen, jedoch bieten die Ergebnisse erste Hinweise auf eine gute Fokussierbarkeit. Diese sind zudem in der gemessenen Fokusgröße von  $< 500 \mu\text{m}$  gemittelt über das gesamte Spektrum bestätigt. Die Fokusgröße wurde mittels eines „knife edge“-Tests [84, 85] ermittelt. Dazu wurde ein Zwischenfokus mittels zweier parabolischer-Spiegel abgebildet. Mit Hilfe einer Rasierklinge wurde der Fokus senkrecht zur Strahlrichtung stückweise abgeschattet. Die transmittierte THz-Intensität wurde mit einer Golay-Zelle gemessen. Durch einfaches Ableiten lässt sich aus diesem Verlauf die Größe des Brennflecks ermitteln.



**Abbildung 3.6** | THz-Intensität des divergenten Strahls in Abhängigkeit des Einfallwinkels in den Detektor relativ zur Ausbreitungsrichtung. Die gestrichelte Linie dient zur Verdeutlichung des Verlaufes.

### 3.5 Impulsenergie und Konversionseffizienz

Die Impulsenergie der generierten THz-Strahlung steigt nach [55] abschnittsweise, näherungsweise linear mit der Impulsenergie des für die Generation verwendeten optischen Impulses an. Dieses Verhalten ist in der Abbildung 3.7 gut zu erkennen. Dargestellt ist die gemessene THz-Impulsenergie in Abhängigkeit der verwendeten optischen Impulsenergie. Die im Nebenbild dargestellte Konversionseffizienz zeigt einen leichten Anstieg bei niedrigen Impulsenergien und das Einsetzen einer Sättigung zu hohen Impulsenergien. Der Verlauf verdeutlicht, dass der vorher erwähnte lineare Anstieg der THz-Impulsenergie wie in [57, 59, 86] beschrieben nur näherungsweise zutrifft.



**Abbildung 3.7** | THz-Impulsenergie in Abhängigkeit von der optischen Impulsenergie. Die THz-Impulsenergie steigt näherungsweise linear mit der eingesetzten optischen Impulsenergie an. Im Nebenbild ist die Effizienz der THz-Generation in Abhängigkeit von der optischen Impulsenergie gezeigt. Die Effizienz steigt im Bereich kleiner optischer Impulsenergien näherungsweise linear mit der Impulsenergie an. Bei hohen Impulsenergien sättigt die Effizienz.

### 3.6 Aussichten

Es konnte gezeigt werden, dass sich mit der Kombination eines dünnen  $LiNbO_3$ -Kristalls und eines  $Si$ -Kristallprismas eine effiziente und starke THz-Quelle mit Feldstärken  $> 50 \text{ kV/cm}$  realisieren lässt. Die Impulscharakteristik ist durch einen nahezu einzelnen Zyklus gekennzeichnet. Das Spektrum ist erwartungsgemäß sehr breit und erreicht mit einer maximalen Frequenz von 3 THz eine Bandbreite von mehreren Oktaven.

Jedoch konnte nicht gezeigt werden, dass die reduzierten Absorptionserluste innerhalb des  $LiNbO_3$ -Kristalls durch die geringe Wegstrecke die Gesamteffizienz erhöhen. Vielmehr wurden mit den Literaturangaben vergleichbare Impulsenergien und Effizienzen gefunden. Das zeigt zwar die prinzipielle Eignung der neuen Geometrie für die THz-

Generation, es können jedoch keine Vorteile gegenüber den bereits beschriebenen und etablierten Methoden ausgemacht werden.

Durch die bereits beschriebene Möglichkeit, die Absorptionsverluste durch eine kryogene Lagerung des  $LiNbO_3$ -Kristalls [58] weiter zu reduzieren, gewinnt die etablierte Generationsmethode mit einem dicken  $LiNbO_3$ -Kristall weiter an Effizienz.

Die in dieser Arbeit gewonnen Erkenntnisse sind in die Gestaltung eines prismenförmigen, optimierten  $LiNbO_4$ -Kristalls mit entspiegelten Oberflächen geflossen [87]. Mit diesem konnten bereits erste Ergebnisse erzielt werden und es zeichnet sich ab, dass sich durch die weitere Optimierung dieser etablierten Quelle Feldstärken im Bereich von einigen 100 kV/cm mit einer 1 mJ optischen Anregung erzielen lassen.





## 4 DYNAMIK EXZITONISCHER SYSTEME

### Erklärung

Wie bei vielen Arbeiten mit einem nicht unerheblichen experimentellen Aufwand und einer komplexen theoretischen Grundlage, wurden die Arbeiten für dieses Kapitel in Kooperation mit mehreren Partnern durchgeführt. Besonders zu erwähnen sind in diesem Zusammenhang Ronja Woscholski, Dr. Andrea Klettke und Dr. Niko Köster. Dieser Umstand bedingt, dass die Datengrundlage eines Teils der Dissertation von Dr. Niko Köster [88] auf den selben Messreihen basiert. Die numerische Simulation wurde von Dr. Andrea Klettke erstellt und findet sowohl in Ihrer Dissertation wie auch in diesem Kapitel Verwendung.

Das Exziton als Quasiteilchen, bestehend aus einem Elektron und einem Loch, existiert in dieser Form nur in Halbleitersystemen und Isolatoren. Häufig wird das Wasserstoffatom als Modellsystem herangezogen[89]. Dieser Schluss liegt nah, sind die Analogien doch eindeutig. Beide stellen ein Zweiteilchensystem aus der Kombination aus einem leichten negativ und einem schweren positiv geladenem Teilchen dar. Es verwundert deshalb nicht, dass auch die Energieschemata vergleichbar sind [9, 89, 11].

Jedoch sollte man nicht ausser Acht lassen, dass das Wasserstoffatom meist ungebunden, frei von äußeren Kräften vorliegt. Im Gegensatz dazu existiert das Exziton ausnahmslos innerhalb des Gitters des Halbleiters.

Nicht nur das Gitter interagiert mit dem Exziton, auch andere Teilchen, Phononen und natürlich Quasiteilchen wie das Exziton interagieren miteinander. Hierbei sind die Dichten weitaus größer als beispielsweise bei einem Wasserstoffgas. Die mittleren freien Weglängen sind sehr klein und es ist nicht auszuschließen, dass dieser Umstand die Analogie zum Wasserstoffatom in bestimmten Aspekten bricht [90, 91, 92].

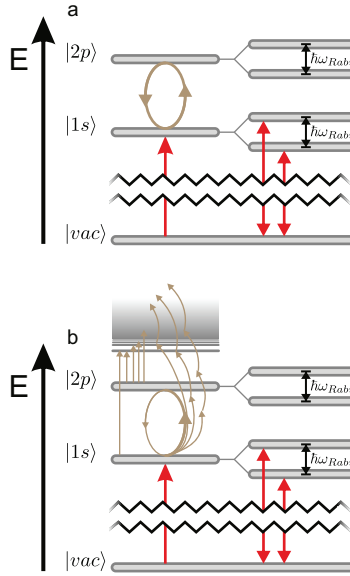
In diesem Kapitel wird die allgemeine Dynamik exzitonischer Systeme untersucht. Es werden theoretische Modelle gezeigt und experimentell bestätigt, die der analogen Behandlung von Wasserstoffatom und Exziton in bestimmten Aspekten widersprechen.

## 4.1 Grundlagen

Die gebundenen exzitonischen Zustände befinden sich energetisch wenige meV unterhalb der Bandlücke des Halbleiters. Für eine Betrachtung der Dynamik der intraexzitonischen Übergänge muss zunächst eine exzitonische Polarisation angeregt werden. Bei den hier vorgestellten Messungen erfolgt dies mit einem wenige 100 fs kurzen, spektral breiten Lichtpuls (Weißlicht-Anregung). Der optische Impuls koppelt unter anderem an den  $|1s\rangle$ -Zustand des Exzitons. Durch die gleichzeitige Einstrahlung eines ebenfalls spektral breiten, etwa 1 ps langen Impuls im THz-Spektralbereich, wird die optisch erzeugte Polarisation manipuliert und weitere Zustände dynamisch besetzt. Von besonderem Interesse ist hier der  $|2p\rangle$ -Zustand, welcher dipolverboten nicht durch ein einzelnes optisches Photon direkt besetzt werden kann. Zudem ermöglicht eine geeignete Anregung die Besetzung der Zustände  $|1s\rangle$  und  $|2p\rangle$  zyklisch zu invertieren. Diese Rabi-Oszillation wurde bereits früh

an atomaren Systemen beobachtet [93, 94] und in Halbleitersystemen beschrieben [95, 96, 97].

Der genaue experimentelle Aufbau ist in Abschnitt 2.3.4 beschrieben. In Abbildung 4.1 ist das Energieschema des beobachteten Systems illustriert.



**Abbildung 4.1** | Vereinfachte, schematische Darstellung der Energieniveaus eines exzitonischen Systems, unter Einfluss eines treibenden elektromagnetischen Feldes im THz-Frequenzbereich. In Abbildung (a) ist ein geschlossenes System dargestellt, wie es von atomaren Systemen bekannt ist. Das treibende Feld initiiert eine Rabi-Oszillation zwischen dem  $|1s\rangle$ - und  $|2p\rangle$ -Zustand. Die beiden Niveaus spalten energetisch in jeweils zwei Niveaus auf (links). Die beiden Subniveaus des  $|1s\rangle$ -Zustandes können optisch beobachtet werden, welches sich in einer Aufspaltung der  $|1s\rangle$ -Resonanz in zwei benachbarte Resonanzen im optischen Spektrum manifestiert. In Abbildung (b) ist die gleiche Situation wie in Abbildung (a) dargestellt. Bei dem System handelt es sich jedoch um ein offenes, welches charakteristisch für die untersuchten exzitonischen Systeme ist. Es existieren mehrere Zustände oberhalb des  $|2p\rangle$ -Niveaus, welche durch das treibende, elektromagnetische Feld ebenfalls adressiert werden.

Dabei ist im Teilbild (a) ein geschlossenes System dargestellt, wie

man es als Analogon zum Wasserstoffatom erwarten würde. Der Übergang aus dem Vakuumzustand  $|vac\rangle$  in den exzitonischen  $|1s\rangle$ -Zustand liegt im Bereich von wenigen eV und erfolgt durch optische Anregung im NIR-Bereich. Der Übergang zwischen dem  $|1s\rangle$ - und dem  $|2p\rangle$ -Zustand liegt bei wenigen meV und erfolgt durch Anregung im THz-Spektralbereich.

Bei einer geeigneten Anregung wird eine Rabi-Oszillation zwischen den beiden Zuständen initiiert [98]. Durch die zyklische Besetzung der beiden Zustände erfolgt eine energetische Aufspaltung in zwei separierte Energieniveaus. Dieser, als Autler-Townes-Effekt [99, 100] bekannte, Vorgang spaltet den vormals einfachen optischen Übergang des  $|1s\rangle$ -Zustands in 2 separate Übergänge auf, die energetisch voneinander getrennt sind. Das manifestiert sich in einem Aufspalten der Resonanz in der spektral aufgelösten optischen Antwort des Systems in zwei separierte Resonanzen.

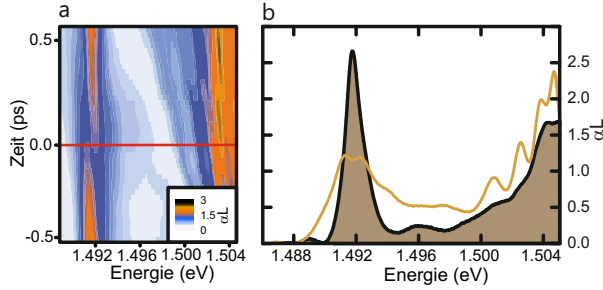
In einem realen exzitonischen System liegt keine geschlossene Situation mehr vor. Dies ist in der Nebenabbildung (b) schematisch dargestellt. Bedingt durch Vielteilchenwechselwirkungen[10, 11] besteht ein großer Kanal in höhere Zustände, bis hin zu den Ionisationszuständen des Exzitons [11]. Das führt zu einer schnellen Verarmung einer Rabi-oszillierenden Besetzung der  $|1s\rangle$ -,  $|2p\rangle$ -Zustände zugunsten höherer Zustände[101, 10]. Diese Vorüberlegungen lassen eine komplexe Antwort des exzitonischen Systems auf eine starke THz-Anregung erwarten. Dabei überlagern sich unterschiedliche Effekte, die sich in der optischen Antwort des Systems manifestieren.

In Abbildung 4.2 ist das NIR-Spektrum einer exzitonischen Polarisation unter dem Einfluss eines starken THz-Feldes gezeigt. Die verwendeten NIR-Weißlicht-Impulse zur Erzeugung einer exzitonischen Polarisation besitzen eine Länge von wenigen 100 fs, die verwendeten THz-Impulse sind etwa 1 ps lang. Die zeitliche Überlappung der beiden Impulse beträgt somit in etwa 1 ps. Im Teilbild (a) in Abbildung 4.2 ist das NIR-Spektrum der Probe unter Einfluss des THz-Feldes in Abhängigkeit des zeitlichen Überlappes des NIR- und THz-Impulses gezeigt. Die auf der Ordinate aufgetragene Zeit beschreibt den relati-

ven Versatz der beiden Impulsmaxima der Einhüllenden zueinander. Demnach liegen beide Maxima bei der Zeit 0 ps genau übereinander. Gut zu erkennen ist die Resonanz des  $|1s\rangle$ -Exziton-Zustandes bei etwa 1,492 eV. Die Resonanz ist bei Zeiten  $< -0,5$  ps ungestört, da die beiden Impulse zeitlich nicht überlappen. Zu größeren Zeiten hin verschiebt sich die Resonanz leicht zu kleineren Energien. Diese Rotverschiebung hat ihren Ursprung im dynamischen Stark-Effekt [7, 102]. Direkt im Bereich des maximalen Überlapps bei 0 ps erkennt man deutlich das Aufspalten der Resonanz in zwei separierte Resonanzen. Diese Manifestation der Rabi-Oszillation zwischen dem  $|1s\rangle$ - und dem  $|2p\rangle$ -Zustand tritt nur unmittelbar im Bereich des maximalen Überlapps, also im Bereich der größten THz-Feldstärken, auf. Zu größeren Zeiten verschwindet die Aufspaltung der Resonanz und die leicht zu höheren Energien verschobene Resonanz schiebt zurück zu niedrigen Energien. Diese Blauverschiebung bei großen Feldstärken resultiert aus den jetzt gegenüber dem dynamischen Stark-Effekt dominierenden ponderomotiven Kräften. Je nach Anregesituation und temporalem Verlauf des THz-Feldes prägt einer der Effekte jeweils eine Blau- bzw. Rotverschiebung auf [7]. Bei Zeiten  $> 0,5$  ps liegt abermals die ungestörte Situation vor.

Zu beachten ist zudem die allgemeine Verbreiterung der  $|1s\rangle$ -Resonanz im Bereich der Zeit Null und die große Dynamik im Bereich höherer Energien nahe der Bandkante. Diese resultiert aus Mehr-Photonen-Prozessen des anregenden THz-Feldes. Beschrieben werden diese Prozesse in [95, 101].

Im Teilbild (b) in der Abbildung 4.2 ist das NIR-Spektrum (orange) zum Zeitpunkt des maximalen Überlapps, also bei der Zeit 0 ps, gezeigt. Mit schwarzer Linie und brauner Füllung ist zum Vergleich das ungestörte Spektrum ohne den Einfluss eines THz-Feldes gezeigt. Gut zu erkennen ist die Aufspaltung der  $|1s\rangle$ -Resonanz, die Verbreiterung der Resonanz insbesondere zu höheren Energien und die ausgeprägte Dynamik nahe der Bandkante.



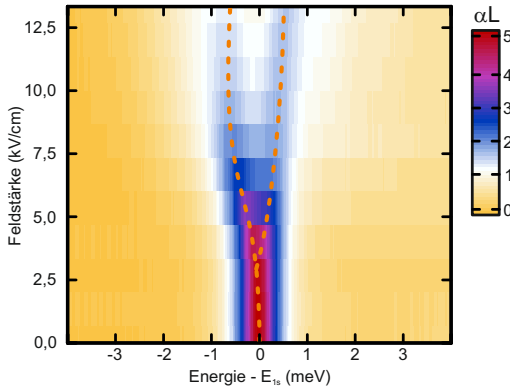
**Abbildung 4.2** | Absorption der verwendeten Probe unter Einfluss eines starken THz-Feldes. In Abbildung (a) ist die Absorption der Probe im Nah-Infrarot-Bereich in Abhängigkeit des zeitlichen Überlapps des Laser-Impulses und des THz-Impulses gezeigt. Zu erkennen ist die Absorption der  $|1s\rangle$ -Resonanz bei etwa 1,492 eV. Bei einer Zeit von -0,5 ps liegt ein ungestörtes System vor. Bei Zeiten  $> -0,5$  ps nimmt der zeitliche Überlapp der beiden Impulse stetig zu, bis er bei der Zeit 0 ps sein Maximum erreicht hat. Hier ist deutlich die Aufspaltung der  $|1s\rangle$ -Resonanz in zwei separate Resonanzen zu erkennen. Mit abnehmendem Überlapp zu größeren Zeiten vereinigen sich die beiden Resonanzen wieder zu einer. Auf der Hochenergieseite des Spektrums sind höhere Harmonische der Anregung zu erkennen. In Abbildung (b) ist das Absorptionsspektrum zum Zeitpunkt des maximalen Überlapps dargestellt. In schwarz mit brauner Füllung ist das Spektrum im ungestörten Zustand gezeigt und in orange das Spektrum unter dem Einfluss des starken THz-Feldes. Zu erkennen ist die Aufspaltung der  $|1s\rangle$ -Resonanz bei etwa 1,492 eV und die höheren Harmonischen im Bereich höherer Energien auf der rechten Seite des Spektrums.

## 4.2 Einfluss der THz-Feldstärke

Prozesse, wie das Besetzen höherer Zustände, insbesondere Ionisationszustände über Mehrphotonenprozesse, sind im Allgemeinen nicht linear von den zugrundeliegenden Feldstärken abhängig. Im Folgenden soll deshalb der Einfluss der THz-Feldstärke auf die zu beobachtenden

Effekte gezeigt werden.

In Abbildung 4.3 ist das Absorptionsspektrum der Probe unter dem Einfluss eines THz-Feldes in Abhängigkeit von dessen Feldstärke dargestellt. Bei einer Feldstärke von  $0 \text{ kV/cm}$  liegt der ungestörte Fall vor, zu erkennen ist die  $|1s\rangle$ -Resonanz des Exzitons. Mit zunehmender Feldstärke schiebt die Resonanz etwas in den niederenergetischen Bereich. Ab einer Feldstärke von etwa  $5 \text{ kV/cm}$  ist das Aufspalten der Resonanz zu erkennen. Mit zunehmender Feldstärke vergrößert sich der energetische Abstand der beiden Resonanzen unter gleichzeitigem leichten Schieben in den niederenergetischen Bereich. Ab einer Feldstärke von etwa  $10 \text{ kV/cm}$  schieben beide Resonanzen leicht in den hochenergetischen Bereich.



**Abbildung 4.3** | Optisches Spektrum in Abhängigkeit von der Feldstärke des THz-Feldes. Bei einer Feldstärke von  $0 \text{ kV/cm}$  ist die  $|1s\rangle$ -Resonanz gut zu erkennen. Ab einer Feldstärke von etwa  $5 \text{ kV/cm}$  ist eine Aufspaltung der Resonanz in zwei separate Resonanzen zu erkennen. Die Aufspaltung erfolgt zunächst asymmetrisch zu kleineren Energien hin. Bei Feldstärken  $> 10 \text{ kV/cm}$  ist ein Schieben der Resonanzen zu höheren Energien zu erkennen.

Zur Verdeutlichung der einzelnen beobachteten Effekte sind in Abbil-



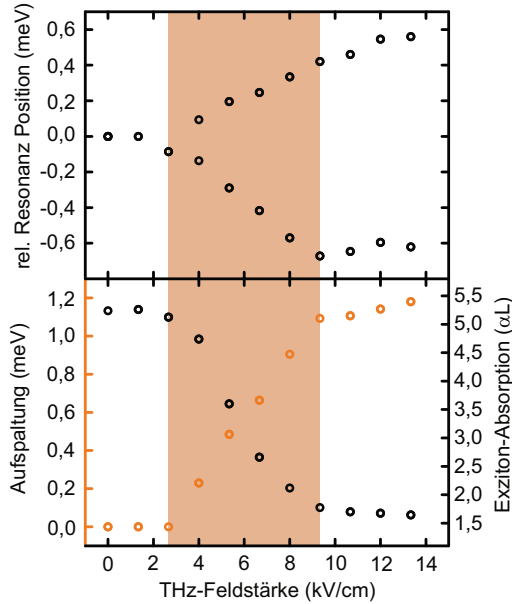
dung 4.4 die Einzelheiten zusammengefasst.

In der oberen Abbildung ist die Position des Maximums der Resonanz relativ zur Position im ungestörten Zustand aufgetragen. Wie in Abbildung 4.3 beschrieben, schiebt die Resonanz bei niedrigen Feldstärken zunächst leicht in den niederenergetischen Bereich. Die Aufspaltung der Resonanz setzt bei einer Feldstärke von etwa 5 kV/cm ein. Ab einer Feldstärke von 10 kV/cm schieben beide Resonanzen leicht zu höheren Energien.

In der unteren Abbildung ist in orange der energetische Abstand der beiden aufgespalteten Resonanzen zueinander dargestellt. Der Abstand wächst ab dem Einsetzen der Aufspaltung bei etwa 5 kV/cm näherungsweise mit einer Steigung von  $0,16 \frac{\text{meVcm}}{\text{kV}}$  linear an. Ab einer Feldstärke von etwa 10 kV/cm nimmt der Anstieg ab und der Abstand der beiden Resonanzen zueinander ist nahezu konstant.

In schwarz ist der Absorptionskoeffizient  $\alpha L$  der aufgespalteten Resonanz in Abhängigkeit zur Feldstärke dargestellt. Dieser ist bei niedrigen Feldstärken bis etwa 3 kV/cm konstant bei etwa 5,5 und nimmt bei mittleren Feldstärken bis etwa 10 kV/cm stark ab. Bei Feldstärken  $>10 \text{ kV/cm}$  bleibt der Absorptionskoeffizient konstant bei etwa 1,6.

Der Verlauf der gezeigten Größen kann in drei Bereiche (markiert durch die Hintergrundfarbe) eingeteilt werden. Im Bereich niedriger Feldstärken kann kein Einfluss des THz-Feldes auf die untersuchten Größen beobachtet werden. Im Bereich mittlerer Feldstärken wächst der energetische Abstand zwischen den beiden Resonanzen linear mit der einwirkenden Feldstärke an. Das entspricht den Erwartungen der klassischen Rabi-Oszillation, bei welcher die Rabi-Frequenz  $\omega_{rabi} = \frac{d_{12} E_{THz}}{\hbar}$  ebenfalls linear mit dem Feld anwächst. Für die Beschreibung der bei höheren Feldstärken einsetzenden Sättigung der Aufspaltung, der Verlauf des Absorptionskoeffizienten und des Schiebens der Resonanz muss jedoch das exzitonische System zusammen mit seinen Vielteilchen-Eigenschaften betrachtet werden.

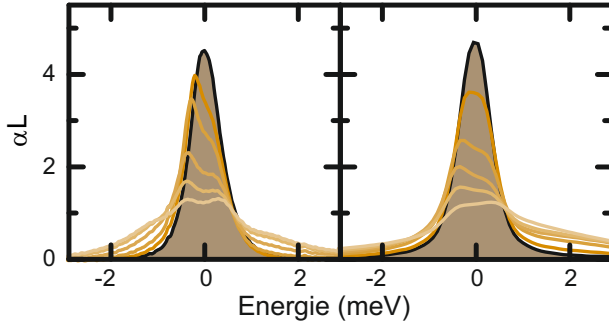


**Abbildung 4.4** | Oben: Position der  $|1s\rangle$ -Resonanz relativ zur Energie der ungestörten Resonanz in Abhängigkeit der THz-Feldstärke. Ab einer Feldstärke von etwa  $5 \text{ kV/cm}$  ist eine Aufspaltung der Resonanz in zwei separate Resonanzen zu erkennen. Die Aufspaltung erfolgt zunächst asymmetrisch zu kleineren Energien hin. Bei Feldstärken  $> 10 \text{ kV/cm}$  ist ein Schieben der Resonanzen zu höheren Energien zu erkennen. Unten, orange: Der energetische Abstand der beiden separaten Resonanzen in Abhängigkeit zur THz-Feldstärke. Die Aufspaltung setzt bei etwa  $5 \text{ kV/cm}$  ein und steigt danach näherungsweise linear mit der Feldstärke an. Ab einer Feldstärke von etwa  $10 \text{ kV/cm}$  ist eine Abnahme des Anstiegs zu erkennen. Die Absorption der Resonanz ist in schwarz dargestellt. Ab einer Feldstärke von etwa  $5 \text{ kV/cm}$  nimmt die Absorption mit zunehmender Feldstärke stark ab. Diese Abnahme der Absorption sättigt bei einer Feldstärke von etwa  $10 \text{ kV/cm}$  und bleibt bei weiter zunehmender Feldstärke konstant.

### 4.3 Theoretische Betrachtung der Vielteilchen-Charakteristik

Wie aus dem vorherigen Abschnitt hervorgeht, besitzt das betrachtete System zwar Aspekte, die sich ähnlich zu denen in atomaren Systemen verhalten, sich jedoch nicht grundlegend hierdurch erklären lassen. Für eine umfassende Beschreibung der beobachteten Phänomene wurde deshalb eine mathematische Modulierung basierend auf einer mikroskopischen Vielteilchentheorie auf Grundlage der Halbleiter-Bloch-Gleichungen angefertigt [10, 101].

In Abbildung 4.5 sind die experimentellen Ergebnisse der mathematischen Modulation gegenübergestellt.

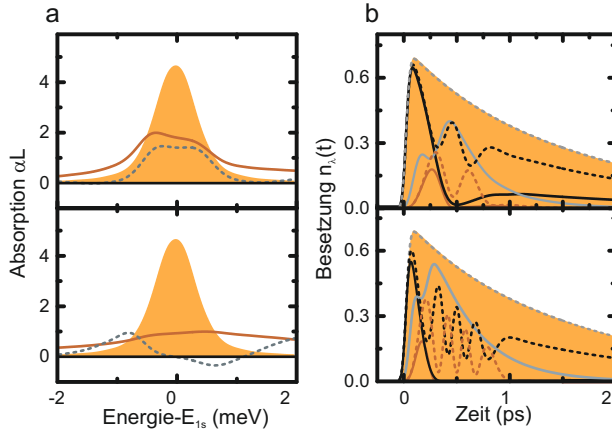


**Abbildung 4.5** | Absorptionsspektrum der  $|1s\rangle$ -Resonanz bei zunehmender (von schwarz= $0\text{ kV/cm}$  bis hell gelb= $13\text{ kV/cm}$ ) THz-Feldstärke. Auf der linken Seite sind die gemessenen Spektren dargestellt. Die mittels einer Vielteilchentheorie berechneten Spektren sind auf der rechten Seite dargestellt. Zu erkennen ist eine gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen Daten und den theoretischen Berechnungen.

Auf der linken Seite der Abbildung ist das experimentell gemessene Absorptionsspektrum der  $|1s\rangle$ -Resonanz bei verschiedenen THz-Feldstärken gezeigt. Die rechte Seite zeigt die entsprechenden Ergeb-

nisse der mathematischen Modulation. Es zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung der theoretischen Daten mit den experimentellen Resultaten. Sowohl das Aufspalten der  $|1s\rangle$ -Resonanz, das Schieben der Resonanz zu niedrigen Energien bei kleinen Feldstärken und das anschließende Schieben der Resonanz zu hohen Energien bei großen Feldstärken wie das Verbreitern der Resonanz insbesondere zu hohen Energien wird von der Theorie gut moduliert.

Um zu zeigen, dass diese Resultate nicht mit einem einfachen, geschlossenen 2-Niveau-Systemen, wie es z.B. in atomaren Gasen näherungsweise vorliegt, erklärt werden können, werden beide Ansätze in Abbildung 4.6 verglichen.



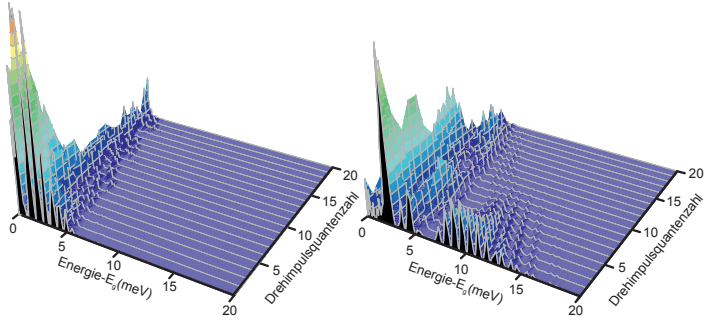
**Abbildung 4.6** | (a) Berechnete Absorptionsspektren bei einer THz-Feldstärke von 4,8 kV/cm (oben) und 9,6 kV/cm (unten) für das modulierte 2-Niveau-System (grau gestrichelt) und das Mehr-Niveau-System (durchgezogen orange). Die berechnete Absorption des ungestörten Systems in dem orange gefüllten Verlauf dargestellt. (b) Zeitlicher Verlauf der Besetzung der  $|1s\rangle$ -Polarisation (Mehr-Niveau-System schwarz durchgezogen, 2-Niveau-System schwarz gestrichelt), der  $|2p\rangle$ -Polarisation (Mehr-Niveau-System rot durchgezogen, 2-Niveau-System rot gestrichelt) und der höheren Niveaus des Mehr-Niveau-Systems (blau durchgezogen) für eine THz-Feldstärke von 4,8 kV/cm (oben) und 9,6 kV/cm (unten). Der Verlauf des ungestörten Systems ist jeweils durch dem orange gefüllten Verlauf (Mehr-Niveau-System) und grau gestrichelt (2-Niveau-System) dargestellt.

Die verwendeten Parameter für die Berechnung des 2-Niveau-Systems und dem Multi-Niveau-Systems unterscheiden sich ausschließlich in der Anzahl der erlaubten Übergänge. Bei der Berechnung des 2-Niveau-Systems sind die Übergänge in höhere Zustände in der Simulation künstlich verboten. In Teilbild (a) ist das berechnete Absorptionsspektrum bei zwei unterschiedlichen Feldstärken dargestellt. Bei niedrigen Feldstärken (oben) von 4,8 kV/cm treten wenige Unterschiede

zwischen den Ergebnissen des Mehr-Niveau-Systems (orange Linie) und dem 2-Niveau-System (gestrichelte Linie) auf. Dabei ist zu beachten, dass die Ergebnisse des Mehr-Niveau-Systems die experimentellen Daten am besten modulieren. Bei höheren Feldstärken (unten) von 9,6 kV/cm versagt die Beschreibung des Systems als 2-Niveau-System eindeutig. Das berechnete Absorptionsspektrum beschreibt die gemessenen Resultate in keiner Weise.

Für das genauere Verständnis der Ergebnisse ist in dem Teilbild (b) der zeitliche Verlauf der Besetzung der einzelnen Niveaus dargestellt. Zur Orientierung ist jeweils der Verlauf der ungestörten  $|1s\rangle$ -Polarisationsstärke dargestellt (Mehr-Niveau-System orange hinterlegt, 2-Niveau-System grau gestrichelt). Zu erkennen ist die ungestörte Dephasierung der Polarisation. Gut zu sehen ist die antizyklische Rabi-Oszillation während der THz-Anregung der  $|1s\rangle$ -Zustände (Mehr-Niveau-System schwarz durchgezogen, 2-Niveau-System schwarz gestrichelt) und der  $|2p\rangle$ -Zustände (Mehr-Niveau-System rot durchgezogen, 2-Niveau-System rot gestrichelt). Während die oszillierende Besetzung des 2-Niveau-Systems ausschließlich dem Verlauf der Dephasierung folgt, werden bei der Mehr-Niveau-Berechnung die  $|1s\rangle$ - und  $|2p\rangle$ -Zustände nach etwa einem halben Zyklus entvölkert und in höhere Zustände (graue durchgezogene Linie) angeregt. Bei höheren Feldstärken (unten) ist dieser Effekt um so deutlicher. Die  $|1s\rangle$ - und  $|2p\rangle$ -Polarisation ist bereits nach 0,4 ps komplett verschwunden und die Polarisation der höheren Zustände nimmt hier ihren größten Wert an.

Es zeigt sich somit, dass in dem realen System bereits nach einer sehr kurzen Zeit von 0,4 ps die energetisch niedrigen Zustände kaum mehr nennenswert besetzt sind. Betrachtet man in Abbildung 4.6 die Besetzungsverteilung der Ionisationszustände 1,5 ps nach der THz-Anregung oberhalb der Bandkante, so fallen insbesondere die hohen Drehimpulsquantenzahlen von bis zu  $l=20$  auf. Durch den einfachen Spin des THz-Photons lassen sich diese Zustände nur durch eine simultane oder kaskadierende Mehr-Photonen-Anregung über virtuelle oder reale Zwischenzustände erreichen.



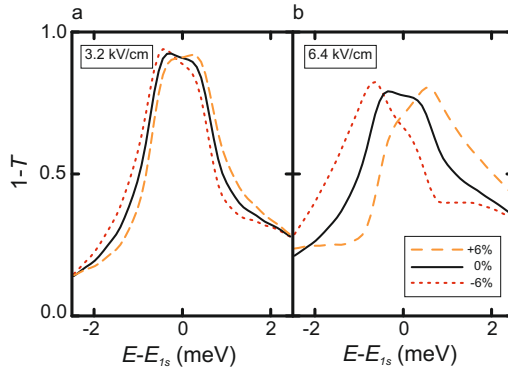
**Abbildung 4.7** | Berechnete Besetzungswahrscheinlichkeit der Kontinuumszustände. Gezeigt ist die Verteilung bei einem THz-Feld von 4,8 kV/cm (links) und 9,6 kV/cm (rechts). Die Hochenergetischen Zustände erreichen Energien von  $>15$  meV oberhalb der Bandkante und es werden Zustände mit einer Drehimpulsquantenzahl von  $l > 20$  besetzt. Für diese Verteilung sind Mehrphotonenprozesse notwendig, an denen mehr als 20 THz-Photonen beteiligt sind.

### 4.3.1 Einfluss der ponderomotiven Kräfte

Das in Abbildung 4.4 gezeigte Aufspalten der Resonanz verläuft für die beiden Subresonanzen leicht asymmetrisch. Dieser Verlauf ist ein Resultat der bei THz-Anregung auftretenden ponderomotiven Ströme und den damit verbundenen Kräften. In Formel 2.14 werden die ponderomotiven Ströme durch den Term  $j_{pond} = \frac{|e|^2}{2\mu} \mathbf{A}_{THz}^2$  beschrieben. Um den Einfluss auf das System genauer zu untersuchen wurde in der mathematischen Modulation ein regelnder Vorfaktor  $s$  hinzugefügt, so dass der Anteil der ponderomotiven Ströme mit dem neuen Term  $j_{pond}(s) = s \frac{|e|^2}{2\mu} \mathbf{A}_{THz}^2$  beliebig verändert werden kann. Die Resultate der modifizierten Analyse sind in Abbildung 4.8 gezeigt. Dabei wurde bei zwei verschiedenen THz-Feldstärken der Anteil der ponderomotiven Ströme um  $\pm 6\%$  variiert. Im Teilbild (a) sind die Resultate für eine THz-Feldstärke von 3,2 kV/cm gezeigt. Zu erkennen ist eine leicht-

te Rotverschiebung bei der Kalkulation mit dem unterdrückten ponderomotiven Strom (gepunktet) und eine leichte Blauverschiebung bei einem erhöhten Strom (gestrichelt). Im Teilbild (b) ist die Kalkulation bei einer THz-Feldstärke von  $6,4 \text{ kV/cm}$  gezeigt. Auch hier lässt sich im Fall des unterdrückten ponderomotiven Stroms eine Rotverschiebung erkennen, jedoch ist diese weitaus ausgeprägter. Gleiches gilt für die Blauverschiebung bei einem erhöhten Strom.

Diese Berechnungen zeigen, dass ponderomotive Effekte eine Verschiebung der Resonanz bewirken können. Durch den quadratischen Einfluss des Vektorpotentials des THz-Feldes nimmt die Verschiebung mit steigenden Feldstärken stark zu. Dieser empfindliche Einfluss des THz-Feldes auf die Verschiebung der Resonanz führt insbesondere bei hohen Feldstärken zu dem leicht asymmetrischen Aufspalten der Resonanz.



**Abbildung 4.8** | Einfluss des ponderomotiven Stroms auf die Verschiebung der Resonanz.

## 4.4 Zusammenfassung

Das untersuchte exzitonische System besitzt einen sehr effizienten Kanal für eine Mehrphotonenanregung in höhere Zustände. Es werden



sehr hohe Ionisationszustände mit sehr hohen Drehimpulsquantenzahlen erreicht. Die beobachtete Rabi-Oszillation tritt nur für einen kurzen Zeitraum von  $<0,5$  ps auf, nach dieser Zeit werden die entsprechenden Niveaus zu Gunsten höherer Niveaus entvölkert. Das System verhält sich somit nur sehr eingeschränkt analog zu einem 2-Niveau-System.

Prinzipiell ließe sich auch argumentieren, dass die systembedingte breitbandige THz-Anregung für diesen Umstand verantwortlich ist, welche nicht ausschließlich den Übergang  $|1s\rangle \rightarrow |2p\rangle$  anregt. In [103] konnte jedoch gezeigt werden, dass das System auch bei einer schmalbandigen, resonanten Anregung des  $|1s\rangle$ - $|2p\rangle$ -Überganges einen großen Kanal für eine Mehrphotonenanregung besitzt und sich sehr ähnlich zu diesem System verhält.

Dieses Experiment konnte zeigen, dass es prinzipiell möglich ist, die Zustände exzitonischer Systeme mit starken THz-Impulsen zu manipulieren.



## 5 KONTROLLE EXZITONISCHER SYSTEME

Wie im vorherigen Kapitel 4 gezeigt werden konnte, ist es möglich, die Polarisation des exzitonischen Systems mittels geeigneter Anregung mit Impulsen im THz-Frequenzbereich zu manipulieren. Die Anregung erfolgte breitbandig und es konnten große Kanäle zu ionisierten Exzitonenzuständen mit sehr großer Drehimpulsquantenzahl nachgewiesen werden, was auf den Vielteilchencharakter des exzitonischen Systems zurückzuführen ist.

Aus weiteren theoretischen Betrachtungen (Abschnitt 2.1.2) geht hervor, dass sich die Eigenschaften des exzitonischen Systems in einem weiteren Punkt stark von denen des atomaren Systems unterscheiden. Durch Vielteilchenwechselwirkungen sind die sonst orthogonalen Zustände  $|2s\rangle$  und  $|2p\rangle$  keine reinen Eigenzustände, sondern gemischte Zustände [10]. Somit ist es möglich, entgegen der sonst gültigen Auswahlregeln, einen dipolverbotenen Übergang aus dem  $|1s\rangle$ - in den  $|2s\rangle$ -Zustand anzuregen. Da dieser Übergang in dieser Form noch in keinem System beobachtet wurde, sind hier grundlegende Erkenntnisse von großem Interesse.

Der erste Schritt zu einer Kontrolle eines exzitonischen Systems ist die gezielte Anregung und das einstellbare Besetzen bestimmter Zustände. Insbesondere die Möglichkeit die Besetzung eines Zustandes über einen  $n\pi$ -Impuls in die eines anderen Zustandes überführen zu können, ist von großem Interesse [104, 105, 106, 107, 108]. Mittels der Anregung über Mehrphotonenprozesse kann darüber hinaus nahezu jeder beliebige Zustand besetzt werden [109].

In diesem Kapitel wird zunächst die Dynamik des im exzitonischen System erlaubten  $|1s\rangle - |2s\rangle$ -Überganges näher beleuchtet. Es wird

die gezielte Besetzung des  $|1s\rangle$ - bzw.  $|2s\rangle$ -Zustandes, ausgehend von dem  $|2s\rangle$ - bzw.  $|1s\rangle$ -Zustandes und das Auftreten einer sogenannten "secondary emission" während einer simultanen NIR- und THz-Anregung gezeigt. Darüber hinaus werden verschiedene Aspekte der THz-Mehrphotonenanregung betrachtet.

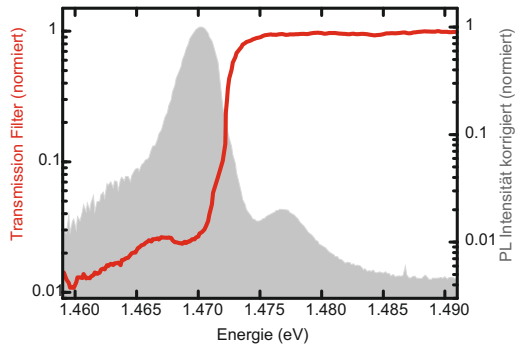
## 5.1 Grundlagen

Für die in dem vorherigen Kapitel 4 vorgestellten Experimente wurde ein kurzer breitbandiger THz-Impuls für die Anregung exzitoniccher Systeme verwendet. Für die gezielte resonante Anregung einzelner Übergänge ist diese Anregungsquelle nur bedingt geeignet, da immer auch andere Übergänge adressiert werden. Die in diesem Kapitel vorgestellten Experimente fanden deshalb an dem Freie-Elektronen-Laser der Strahlungsquelle ELBE im HZDR in Dresden-Rossendorf statt. Die Quelle ist in Abschnitt 2.3.3 näher beschrieben. Die erzeugten THz-Impulse besitzen eine Länge von etwa 20 - 30 ps und eine energetische Breite von  $< 0,2$  meV. Die Zentralfrequenz lässt sich über einen breiten Bereich beliebig einstellen, die erreichbaren Feldstärken liegen im Bereich von  $> 50$  kV/cm.

Die Kontrolle des Systems erfolgt über die Messung der Photolumineszenz, ausgelöst durch die Rekombination der angeregten s-artigen Zustände. Dazu wurde die emittierte Photolumineszenz in ein Gitterspektrometer fokussiert und anschließend auf eine Streak-Kamera abgebildet. Die erreichbare zeitliche Auflösung wurde sowohl von dem verwendeten Anregimpuls wie auch von der Streak-Kamera selbst limitiert und lag bei etwa 10 ps. Die spektrale Auflösung wurde weitestgehend von dem verwendeten Gitterspektrometer festgelegt und lag bei  $< 1$  meV.

Da die zu erwartende Lumineszenz des  $|1s\rangle$ -Zustandes etwa um den Faktor 100 größer war als die Lumineszenz aus dem  $|2s\rangle$ -Zustand und damit in der gleichen Größenordnung wie das erreichbare Signal-zu-

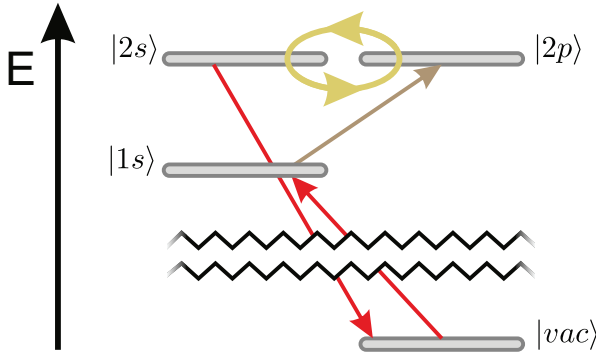
Rausch Verhältnis der Streak-Kamera lag, wurde die Intensität des optischen Spektrums partial im niederenergetischen Bereich mit einem sehr dünnen Graufilter (Kodak Wratten ND2) um etwa 1,5 Größenordnungen abgeschwächt. Dabei wurde die Filterkante zwischen der  $|1s\rangle$ - und der  $|2s\rangle$ -Resonanz positioniert. Somit konnte rechnerisch partiell ein Signal-zu-Rausch-Verhältnis von  $10^{-4}$  erreicht werden. Das aufgenommene Spektrum des eingesetzten Filters diente im Nachhinein als Korrekturfunktion für die weiteren Messungen. In Abbildung 5.1 ist das gemessene Spektrum des Filters und das korrigierte PL-Spektrum der verwendeten Probe gezeigt.



**Abbildung 5.1** | Spektrum des verwendeten partiellen Graufilters (rot) und das mit der Filterfunktion korrigierte PL-Spektrum der verwendeten Probe (grau gefüllt). Die Filterkante befand sich bei etwa 1,472 eV zwischen der  $|1s\rangle$ - und der  $|2s\rangle$ -Resonanz der verwendeten Probe. Das Signal-zu-Rausch-Verhältnis des gezeigten PL-Spektrums beträgt partiell bis zu 4 Größenordnungen, gut zu erkennen bei dem Vergleich des niederenergetischen Rauschniveaus mit dem hochenergetischem.

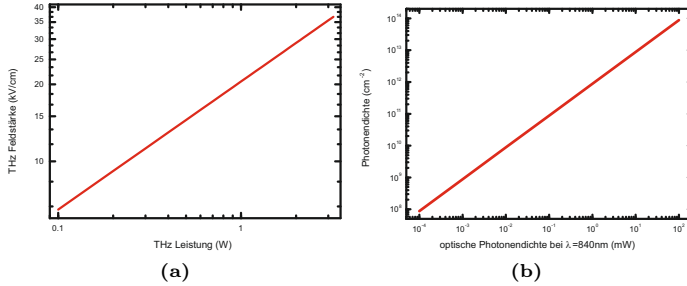
Das vereinfachte Anregungsschema des betrachteten exzitonischen Systems mit dem prognostizierten, gemischte  $|2p\rangle$ - und  $|2s\rangle$ -Zustand ist in Abbildung 5.2 dargestellt. Die Anregung des  $|1s\rangle$ -Zustandes erfolgt dipolerlaubt aus dem p-artigen Vakuumzustand im NIR-Bereich. Die

weitere Anregung in den gemischten  $|2p\rangle$ - $|2s\rangle$ -Zustand erfolgt durch einen Impuls des FELs im THz-Frequenzbereich. Durch die Coulombstreuung [10] sind diese beiden Zustände gekoppelt, so dass der  $|2s\rangle$ -Zustand eine Besetzung erfährt. Die Beobachtung des Systems erfolgt über die Messung der optischen Rekombination des  $|2s\rangle$ -Zustandes mit dem p-artigen Vakuum-Zustand.



**Abbildung 5.2** | Schematische Darstellung der Energieniveaus eines exzitonischen Systems bei resonanter Anregung durch einen NIR-Impuls und einem starken THz-Feld. Der Übergang aus dem  $|vac\rangle$ -Zustand in den  $|1s\rangle$ -Zustand erfolgt optisch im NIR-Bereich. Der  $|1s\rangle \rightarrow |2p\rangle$ -Übergang erfolgt mittels THz-Anregung. Da die Zustände  $|2p\rangle$  und  $|2s\rangle$  durch die Vielteilchen Charakteristik des exzitonischen Systems keine reinen Zustände, sondern Mischzustände sind, erfährt der  $|2s\rangle$ -Zustand eine Besetzung. Die strahlende Rekombination des  $|2s\rangle$ -Zustandes mit dem  $|vac\rangle$ -Zustandes wurde als Photolumineszenz gemessen.

Für das bessere Verständnis der im Weiteren angegebenen Größen ist in den Abbildungen 5.3 jeweils der bei den Messungen vorliegende Zusammenhang zwischen der gemessenen Leistung des THz-Feldes und der Feldstärke am Ort der Probe bzw. zwischen der gemessenen optischen Anregungsleistung und der am Ort der Probe vorliegenden Photonendichte dargestellt.



**Abbildung 5.3** | (a) Zusammenhang zwischen Leistung der gepulsten THz-Strahlung und der maximalen Feldstärke am Probenort. Diese Darstellung dient lediglich als Referenz für die Umrechnung der in dieser Arbeit angegebenen Größen. (b) Zusammenhang zwischen Leistung der gepulsten Nah-Infrarot-Strahlung und der Photonendichte am Probenort. Diese Darstellung dient lediglich als Referenz für die Umrechnung der in dieser Arbeit angegebenen Größen.

## 5.2 Manipulation exzitoner Populationen

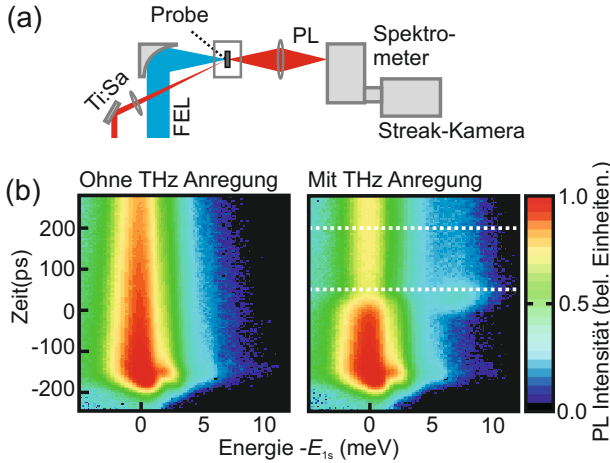
Die Dephasierungszeit der optisch resonant induzierten  $|1s\rangle$ -Polarisation in GaAs beträgt einige ps, eine entsprechende Exzitonenpopulation baut sich in etwa der gleichen Zeit auf [5, 110]. Im folgenden soll das Verhalten einer inkohärenten Population bei der Anregung aus dem  $|1s\rangle$ -Zustand in den gemischten  $|2s\rangle$ - $|2p\rangle$ -Zustand untersucht werden. Mittels eines NIR-Impulses mit der Länge von etwa 3 ps wird der Übergang aus dem Vakuumzustand in den  $|1s\rangle$ -Zustand resonant angeregt. Um sicher zu stellen, dass die Population genug Zeit hat sich aufzubauen, erfolgt die resonante Anregung aus dem  $|1s\rangle$  in den gemischten  $|2s\rangle$ - $|2p\rangle$ -Zustand mit dem gepulsten THz-Feld des FELs etwa 200 ps nach der optischen Anregung. Nach dieser Zeit liegt eine ausschließlich inkohärente Verteilung vor.

In der Abbildung 5.4a ist der Versuchsaufbau illustriert. Die kollimierte THz-Strahlung des FELs wird über einen parabolischen Spie-

gel senkrecht zur Oberfläche in die Probe fokussiert. Der NIR-Impuls wird unter einem steilen Winkel auf die Probe fokussiert. Beide Foki werden mittig auf der Probe übereinander gelegt. Die transmittierte PL wird mit einer Linse gesammelt und in die Streak-Kamera fokussiert.

Die Impulsrate des NIR-Lasers wird mit der Impulsrate des FELs elektronisch synchronisiert und beträgt 13 MHz. Der zeitliche Versatz der beiden Impulse wird über die Laufzeitveränderung des elektronischen Synchronisationssignals eingestellt.

In Abbildung 5.4b ist jeweils der zeitliche Verlauf des PL-Spektrums ohne bzw. mit THz-Anregung gezeigt. Das Bild links, ohne THz-



**Abbildung 5.4** | (a) Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus. (b) Zeitlicher Verlauf der PL-Intensität ohne THz-Anregung (links) und mit THz-Anregung (rechts). Zu erkennen ist die strahlende Emission des  $|1s\rangle$ -Exziton-Zustandes bei der Energie  $E_{1s}$ - und unter THz-Anregung die zusätzliche die Emission des  $|2s\rangle$ -Exziton-Zustandes bei etwa 8 meV oberhalb der  $E_{1s}$ -Energie.

Anregung, zeigt den typischen PL-Verlauf einer resonant angeregten GaAs-Quantenfilmprobe. Der asymmetrische Verlauf zum Zeit-

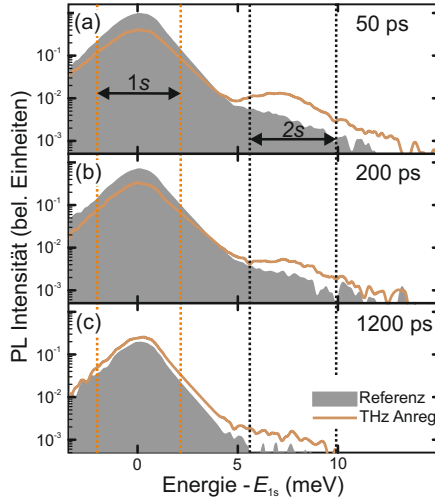


punkt der einsetzenden Emission mit der kleinen zusätzlichen Emission bei etwa 2 meV oberhalb der  $|1s\rangle$ -Energie resultiert aus Rayleigh-Streuprozessen [111] während der Anregung.

Die PL-Emission der  $|1s\rangle$ -Resonanz klingt mit einer typischen Abklingzeit von  $\tau=580$  ps ab. Durch die resonante Anregung bei niedrigen Photonendichten des  $|1s\rangle$ -Zustandes bilden sich vornehmlich  $|1s\rangle$ -Exzitonen und es ist keine nennenswerte ausgehende Emission aus höheren Zuständen zu beobachten [10].

Der zeitliche Verlauf der PL-Emission auf der rechten Seite, mit der zusätzlichen THz-Anregung, zeigt zeitlich vor der THz-Anregung einen vergleichbaren Verlauf, wie der Verlauf links ohne THz-Anregung. Zum Zeitpunkt der THz-Anregung (0 ps auf der Ordinate) erkennt man eine deutliche und schlagartige Reduktion der aus dem  $|1s\rangle$ -Zustand ausgehenden PL-Emission. Gleichzeitig ist das plötzliche erscheinen einer zusätzlichen PL-Emission aus dem  $|2s\rangle$ -Zustand, etwa 6 meV oberhalb der  $|1s\rangle$ -Energie, zu beobachten. Die Emission resultiert aus der Rekombination der durch den THz-Impuls aufgebauten  $|2s\rangle$ -Population. Diese Beobachtung ist ein direkter Nachweis für einen durch Coulomb-Streuung induzierten gemischten  $|2p\rangle$ - $|2s\rangle$ -Zustandes, der hier erstmalig beobachtet wurde.

In der Abbildung 5.5 sind zur Verdeutlichung die einzelnen PL-Spektren zu unterschiedlichen Zeiten nach der THz-Anregung aufgetragen. Im der Teilabbildung 5.5(a) sind die PL-Spektren 50 ps nach der THz-Anregung (orange: mit THz, grau hinterlegt: ohne THz) dargestellt. Während die Intensität des PL-Spektrums mit THz-Anregung gegenüber dem ohne THz-Anregung bei der Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons geschwächt ist, verhält es sich bei der Energie des  $|2s\rangle$ -Exzitons umgekehrt. Hier tritt bei dem Spektrum ohne THz-Anregung keine nennenswerte Emission auf, wohingegen die PL-Emission des  $|2s\rangle$ -Exzitons mit THz-Anregung deutlich zu erkennen ist. Bei späteren Zeiten, 200 ps nach der THz-Anregung, sind in Teilabbildung 5.5(b) ähnliche Verhältnisse zu erkennen. Durch den fortgerittenen Abbau der Population sind die PL-Intensitäten jeweils geringer. Auch hier ist deutlich die Emission aus dem  $|2s\rangle$ -Zustand zu erkennen. Zu sehr späten Zei-



**Abbildung 5.5** | PL Spektrum mit (orange) und ohne (ausgefüllt grau) THz-Anregung zu unterschiedlichen Zeitpunkten nach der THz-Anregung. (a) 50 ps nach der THz-Anregung. Zu erkennen ist eine deutlich schwächere PL-Intensität bei der Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons nach vorheriger THz-Anregung. Gleichzeitig erkennt man eine deutliche PL-Antwort bei der Energie des  $|2s\rangle$ -Exzitons nach vorheriger THz-Anregung. (b) 200 ps nach der THz-Anregung. Die PL-Intensität bei der Energie des  $|2s\rangle$ -Exzitons ist deutlich schwächer als bei (a), die PL-Intensität bei der Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons ist etwas schwächer als die Intensität ohne THz-Anregung. (c) die PL-Signatur bei der Energie des  $|2s\rangle$ -Exzitons ist nur noch schwach zu erkennen. Die PL-Intensität bei der Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons übersteigt mit vorheriger THz-Anregung die Intensität ohne vorherige THz-Anregung.

ten, 1200 ps nach der THz-Anregung, in Teilabbildung 5.5(c), ist die PL-Emission aus dem  $|2s\rangle$ -Zustand mit THz-Anregung fast vollständig verschwunden, da die Population nahezu komplett rekombiniert oder in andere Zustände gestreut ist. Zu beachten ist allerdings, dass die PL-Emission des  $|1s\rangle$ -Zustandes mit THz-Anregung nun gegenüber der ohne THz-Anregung leicht erhöht ist. Dies resultiert aus der

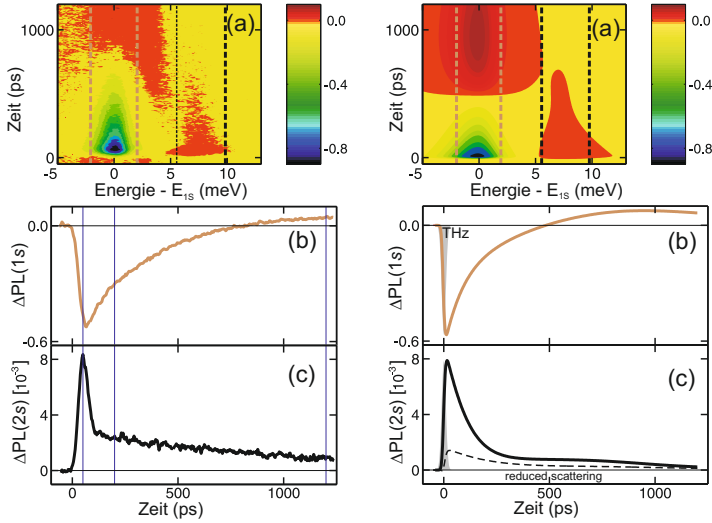
anfänglichen Anregung eines Teils der  $|1s\rangle$ -Population durch den THz-Impuls in weitere, nicht strahlende rekombinierende Zustände. Diese besitzen in der Regel eine lange Lebensdauer, weshalb die Ladungsträger quasi in diesen Zuständen gelagert werden (engl. shelving), bevor sie in den  $|1s\rangle$ -Zustand zurückstreuen und aus diesem strahlend rekombinieren.

Deutlicher wird dieses "shelving" beim betrachten des differentiellen Spektrums

$I_{PL_{THz}}(E, t) - I_{PL_0}(E, t)$  in der Abbildung 5.6. Hier sind auf der linken Seite die Ergebnisse einer experimentellen und auf der rechten Seite einer mikroskopischen Modellrechnung dargestellt, welche mit den Messergebnissen durchweg sehr gut vergleichbar sind. In der Teilabbildung 5.6a erkennt man im differentiellen, zeitaufgelöstem PL-Spektrum deutlich die Unterdrückung der  $|1s\rangle$ -PL und das Aufkommen einer PL-Emission aus dem  $|2s\rangle$ -Zustand zum Zeitpunkt der THz-Anregung (0 ps auf der Ordinate). Sehr gut zu erkennen ist das Abklingen der  $|2s\rangle$ -PL und das Rückgewinnen der  $|1s\rangle$ -PL bei Zeiten von etwa 800 ps nach der THz-Anregung. Zu späten Zeiten ist die  $|1s\rangle$ -PL mit vorheriger THz-Anregung deutlich erhöht gegenüber der PL ohne THz-Anregung. Dieser Überschuss resultiert aus den Ladungsträgern, die durch die THz-Anregung in nicht strahlend rekombinierende Zustände angeregt wurden und langsam in den  $|1s\rangle$ -Zustand zurück streuen. Die Zeiten für diese Streuung über Phononenwechselwirkungen können durchaus ein Vielfaches der üblichen  $|1s\rangle$ -Abklingzeit [110] betragen.

In den Teilabbildungen 5.6(b),(c) sind jeweils die spektral integrierten Transienten der  $|1s\rangle$ - bzw.  $|2s\rangle$ -PL dargestellt. Auch hier bestätigt sich der zuvor angesprochene zeitliche Verlauf der PL. Sehr gut zu erkennen ist die Anregung aus dem  $|1s\rangle$ -Zustand in den  $|2s\rangle$ -Zustand zum Zeitpunkt der THz-Anregung und das Überschießen der  $|1s\rangle$ -Emission zu späten Zeiten durch das PL-shelving. Auffallend in der Teilabbildung (c) ist der anfänglich starke Abfall der PL, welchem ein wesentlich langsames Abklingen folgt. In der mikroskopischen Modellrechnung konnte dieser mehrfach-exponentielle Verlauf nachvollzogen

werden. Dabei resultiert das anfänglich schnelle Abklingen der PL aus den Eigenschaften der für den gemischten  $|2s\rangle$ - $|2p\rangle$ -Zustand verantwortlichen Coulomb-Streuung. Dieser liegen die Zeiten  $\tau_{conv}$  für die Streuung aus dem  $|2p\rangle$ - in den  $|2s\rangle$ -Zustand und  $\tau_{rel}$  für die Relaxation des  $|2s\rangle$ -Zustandes bis zum Erreichen eines Quasigleichgewichtes zugrunde. Die anfängliche Rekombinationsrate wird deshalb durch  $\tau_{2s}^{-1} = \tau_{rel}^{-1} - \tau^{-1}_{conv}$  beschrieben. Der nachfolgende, langsamere Zerfall ist durch das Erreichen eines Quasigleichgewichts gekennzeichnet. Die Zerfallsrate  $\tau_{phon}^{-1}$  ist hier größtenteils durch Phononenstreuungsprozesse beschrieben. Reduziert man in der mikroskopischen Modellrechnung den Anteil der Streuung aus dem  $|2p\rangle$ -Zustand in den  $|2s\rangle$ -Zustand um den Faktor 20, so erhält man den in Teilabbildung (c) gezeigten gestrichelten Verlauf. Deutlich zu erkennen ist, dass der beobachtete anfängliche schnelle Zerfall der  $|2s\rangle$ -Population nur durch das Vorhandensein der  $|2p\rangle$ - $|2s\rangle$ -Streuung zu erklären ist. Ein gewisser Anteil einer  $|2s\rangle$ -Population durch die thermische Relaxation ionisierter Exzitonen in die  $|1s\rangle$ - und  $|2s\rangle$ -Zustände verbleibt auch in der Modellrechnung mit reduzierter  $|2p\rangle$ - $|2s\rangle$ -Streuung.



**Abbildung 5.6** | Vergleich der experimentell gemessenen Daten mit den Daten der theoretischen Berechnung. (a) Darstellung des zeitlichen Verlaufs der differentiellen PL-Intensität der experimentellen Daten (links) und der Daten der theoretischen Berechnung (rechts). Zu erkennen ist eine Abnahme der PL-Intensität bei der Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons kurz nach der THz-Anregung. Gleichzeitig steigt die PL-Intensität bei der Energie des  $|2s\rangle$ -Exzitons stark an. Ab etwa 500 ps nach der THz-Anregung verschwindet die PL-Signatur bei der Energie des  $|2s\rangle$ -Exzitons. Die differentielle PL-Intensität bei der Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons schwenkt zu einem positiven Vorzeichen um. (b) Zeitlicher Verlauf der differentiellen PL-Intensität bei der Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons. (c) Zeitlicher Verlauf der differentiellen PL-Intensität bei der Energie des  $|2s\rangle$ -Exzitons.

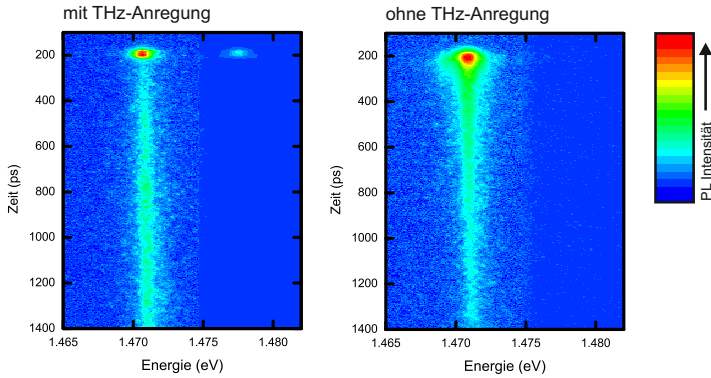
### 5.3 Manipulation exzitonischer Polarisationen

Der vorherige Abschnitt 5.2 beschäftigte sich mit der Manipulation von inkohärenten Populationen. Durch die relativ lange Zeit von meh-

rerer 100 ps zwischen der optischen Anregung und der THz-Anregung war sicher gestellt, dass die anfängliche Polarisation komplett dephasiert ist und sich eine inkohärente Exziton-Population aufgebaut hat. Dieser Abschnitt beschäftigt sich mit der Manipulation der exzitonischen Polarisation, realisiert durch die gleichzeitige sowohl optische wie auch THz-Anregung.

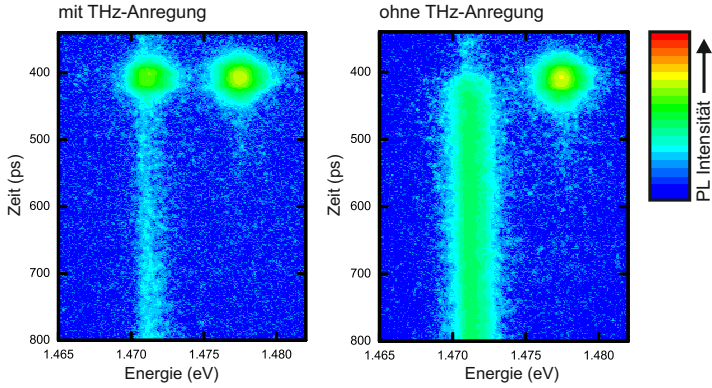
Der experimentelle Aufbau gleicht dem in Abbildung 5.4(a) dargestellten. Auch die restlichen Parameter, bis auf den zeitlichen Abstand zwischen den beiden Impulsen, wurden gegenüber denen aus Abschnitt 5.2 nicht geändert.

In Abbildung 5.7 ist das zeitlich aufgelöste PL-Spektrum bei resonanter optischer Anregung in den  $|1s\rangle$ -Zustand und gleichzeitiger THz-Anregung resonant zum  $|1s\rangle$ - $|2s\rangle$ -Übergang gezeigt. Bei der Situation mit THz-Anregung auf der linken Seite ist eine PL-Emission aus dem  $|2s\rangle$ -Zustand zeitgleich mit der Anregung des  $|1s\rangle$ -Zustandes zu erkennen. Zudem ist das Abschwächen der PL-Emission aus dem  $|1s\rangle$ -Zustand im Vergleich zur Situation ohne THz-Anregung (rechts) gut zu erkennen. Die umgekehrte Anregesituation ist in Abbildung 5.8 ge-



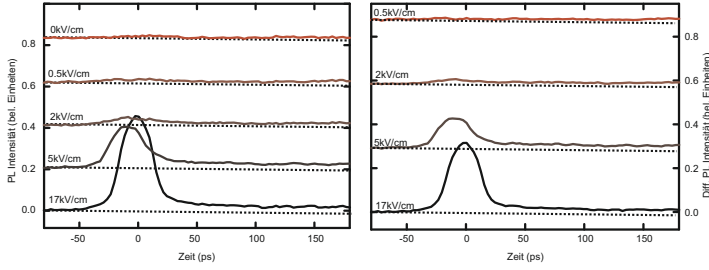
**Abbildung 5.7** | Zeitlicher und spektraler Verlauf der PL-Intensität bei einer NIR-Anregung mit der Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons und gleichzeitiger THz-Anregung mit der Energie des Überganges  $|1s\rangle \rightarrow |2s\rangle$  (links) und ohne THz-Anregung (rechts).

zeigt. Hier erfolgt die optische Anregung resonant zum  $|2s\rangle$ -Exziton Zustand. Die THz-Anregung erfolgt wieder resonant zum Übergang  $|2s\rangle \rightarrow |1s\rangle$ , gleichzeitig mit der optischen Anregung. Zu erkennen ist ein deutlicher Anstieg der  $|1s\rangle$ -PL-Intensität zum Zeitpunkt der simultanen Anregung (links) gegenüber der Situation ohne THz-Anregung (rechts). Gefolgt ist dieser starke Anstieg von einer starken Abschwächung der  $|1s\rangle$ -PL. Betrachtet man zunächst die Situation der op-



**Abbildung 5.8** | Zeitlicher und spektraler Verlauf der PL-Intensität bei einer NIR-Anregung mit der Energie des  $|2s\rangle$ -Exzitons und gleichzeitiger THz-Anregung mit der Energie des Überganges  $|2s\rangle \rightarrow |1s\rangle$  (links) und ohne THz-Anregung (rechts).

tischen, resonanten Anregung in den  $|1s\rangle$ -Zustand bei gleichzeitiger Anregung des  $|1s\rangle$ - $|2s\rangle$ -Überganges mit einem THz-Impuls, so stellt sich erwartungsgemäß durch den THz-getriebenen Übergang im  $|2s\rangle$ -Zustand eine Besetzung ein, welche durch die emittierte PL sichtbar wird. In Abbildung 5.9 ist der zeitliche Verlauf der PL (links) und der der differentiellen PL (rechts) mit der Energie des  $|2s\rangle$ -Zustandes ( $I_{diff}(t) = I_{2s_{THz}}(t) - I_{2s_0}(t)$ ) bei unterschiedlichen THz-Feldstärken dargestellt. Zu erkennen ist eine zunehmende PL-Emission des  $|2s\rangle$ -Zustandes mit steigender THz-Feldstärke. Dabei steigt die Intensität der PL jeweils während der THz-Anregung stark an und fällt

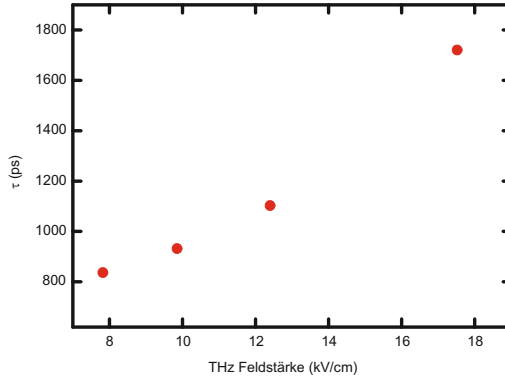


**Abbildung 5.9** | Zeitlicher Verlauf der PL-Intensität (links) des  $|2s\rangle$ -Zustandes bei resonanter, optischer Anregung in den  $|1s\rangle$ -Zustand und gleichzeitiger THz-Anregung des  $|1s\rangle$ - $|2p\rangle$ -Überganges bei unterschiedlichen THz-Feldstärken. Zeitlicher Verlauf der differentiellen PL des  $|2s\rangle$ -Zustandes (rechts). Der relative zeitliche Versatz der einzelnen Maxima ist Messtechnisch bedingt.

darauf hin wieder stark ab. Die Halbwertsbreite dieser anfänglichen PL-Emission beträgt ca. 30 ps, welches der Länge des THz-Impulses entspricht. Nach dieser anfänglichen intensiven und kurzlebigen PL-Emission ist ein kleiner Anteil einer verbliebenden PL zu erkennen, welche monoexponentiell zerfällt. Die Halbwertszeit  $\tau$  ist dabei abhängig von der Intensität der vorherigen THz-Anregung (Abbildung 5.10). Dabei steigt die Halbwertszeit mit zunehmender THz-Feldstärke an.

Über die Ursache für dieses Verhalten lassen sich an dieser Stelle nur Vermutungen anstellen. Eine durchaus plausible Erklärung ist die Zunahme der Halbwertszeit durch die Erhöhung der Temperatur der Exzitonpopulation durch den zunehmenden Energieeintrag bei höheren THz-Feldstärken. Die strahlende Halbwertszeit steigt proportional, in gewissen Grenzen, mit der Temperatur an [112]. Die eingetragene Energie durch die Erhöhung der THz-Feldstärke ist zwar sehr klein, doch beschränkt diese sich zuerst auf die Temperatur der angeregten Exzitonpopulation.

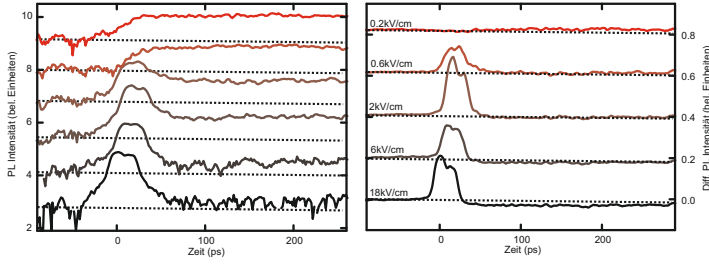




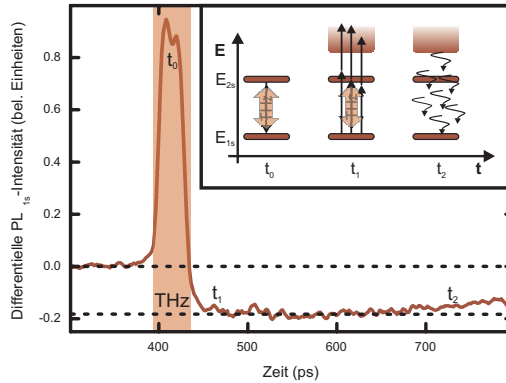
**Abbildung 5.10** | Halbwertszeit des späten monoexponentiellen Zerfalls der  $|2s\rangle$ -PL in Abhängigkeit der THz-Feldstärke.

Bei der Situation der optischen, resonanten Anregung in den  $|2s\rangle$ -Zustand bei gleichzeitiger Anregung des  $|2s\rangle$ - $|1s\rangle$ -Übergangs mit einem THz-Impuls, erhält man den in Abbildung 5.11 gezeigten zeitlichen Verlauf der  $|1s\rangle$ -PL (links). Zusätzlich gezeigt ist der Verlauf der differentiellen PL ( $I_{diff}(t) = I_{1s_{THz}}(t) - I_{1s_0}(t)$ ) mit der Energie des  $|1s\rangle$ -Zustandes bei verschiedenen THz-Feldstärken (rechts). Bei der geringsten Feldstärke von 0,2 kV/cm ist kein signifikanter Anstieg der PL zum Zeitpunkt des THz-Impulses zu erkennen (0 ps). Zu späteren Zeiten steigt die PL langsam an. Dieser Anstieg resultiert aus der Besetzung des Zustandes durch die Streuung, z.B. über Phononenwechselwirkung, aus höheren Zuständen, insbesondere des  $|2s\rangle$ -Zustandes in den  $|1s\rangle$ -Zustand. Bei höheren Feldstärken ist ein sprunghafter Anstieg der PL zum Zeitpunkt der THz-Anregung zu erkennen. Dieser resultiert aus dem durch den THz-Impuls stimulierten Übergang aus dem  $|2s\rangle$ -Zustand in den  $|1s\rangle$ -Zustand.

Deutlicher wird die Situation bei der Betrachtung des zeitlichen Verlaufs der differentiellen PL-Intensität des  $|1s\rangle$ -Exzitons ( $I_{diff}(t) = I_{1s_{THz}}(t) - I_{1s_0}(t)$ ) in Abbildung 5.12(rechts). Gut zu erkennen ist bei



**Abbildung 5.11** | Zeitlicher Verlauf der PL-Intensität des  $|1s\rangle$ -Zustandes (links) nach einer resonanten, optischen Anregung in den  $|2s\rangle$ -Zustand bei gleichzeitiger Anregung des Überganges  $|2p\rangle \rightarrow |1s\rangle$  mit einem THz-Impuls bei unterschiedlichen THz-Feldstärken. Auf der rechten Seite ist der entsprechende Verlauf der differentiellen PL-Intensität gezeigt. Der relative zeitliche Versatz der einzelnen Maxima ist Messtechnisch bedingt.



**Abbildung 5.12** | Zeitlicher Verlauf der differentiellen PL-Intensität des  $|1s\rangle$ -Zustandes bei einer NIR-Anregung mit der Energie des  $|2s\rangle$ -Exzitons und gleichzeitiger THz-Anregung mit der Energie des Überganges  $|2s\rangle \rightarrow |1s\rangle$ . Im Nebenbild ist der zeitliche Verlauf der Besetzungen schematisch dargestellt.

hohen THz-Feldstärken der starke Anstieg, gefolgt von einem starken Abschwächen der PL-Intensität während der THz-Anregung. Die PL-Intensität kurz nach der THz-Anregung mit einer Feldstärke von

18 kV/cm liegt etwa 20 % unterhalb der Intensität ohne THz-Anregung. Vergleicht man diese Dynamik mit der Länge des THz-Impulses (orangefarbiges Rechteck), so wird klar, dass die THz-Anregung in diesem Fall nicht nur zu einem Transport der Polarisation aus dem  $|2s\rangle$ - in den  $|1s\rangle$ -Zustand führt, sondern gleichzeitig auch höhere Zustände bzw. dunkle, nicht optisch rekombinierende Zustände, ausgehend von dem  $|1s\rangle$ -Zustand, anregt. In der Nebenabbildung ist diese Situation schematisch dargestellt. Zu späten Zeiten ( $t_2$ ) nimmt die PL-Intensität des  $|1s\rangle$ -Zustandes durch die Relaxation aus den zuvor besetzten, nicht strahlenden Zuständen in den  $|1s\rangle$ -Zustand wieder zu.

### 5.3.1 Polarisierte Emission

Um die Frage zu klären, ob es sich bei der gleichzeitigen optischen- und THz-Anregung um eine Manipulation kohärenter oder inkohärenter Zustände handelt, wurde jeweils die zur Anregung kollinear bzw. komplementär polarisierte PL-Emission getrennt detektiert. In Abbildung 5.13 ist der zeitliche Verlauf der  $|1s\rangle$ -PL jeweils im Vergleich mit kollinear oder komplementärer Detektion bei unterschiedlichen zeitlichen Abständen zwischen der optischen-Anregung in den  $|2s\rangle$ -Zustand und der THz-Anregung resonant zum  $|2s\rangle$ - $|1s\rangle$ -Übergang dargestellt. In der oberen Abbildung, bei gleichzeitiger optischer und THz-Anregung, erkennt man einen deutlichen, schnellen Anstieg der  $|1s\rangle$ -PL zum Zeitpunkt der THz-Anregung unter kollinear polarisierter Detektionsgeometrie (rot). In einer zur optischen Anregung komplementären Detektionspolarisation ist kein Anstieg der  $|1s\rangle$ -PL zu erkennen (grün). Erst zu späteren Zeiten ist ein langsamer Anstieg, wie auch bei der kollinearen Geometrie, zu erkennen. Dieser ergibt sich aus dem langsamen Auffüllen des  $|1s\rangle$ -Zustandes aus relaxierenden höheren und dunklen Zuständen. Die Vergleichsmessung ohne THz-Anregung zeigt einen langsamen Anstieg der  $|1s\rangle$ -PL nach der optischen Anregung,

entsprechend der längeren Streuzeiten aus dem  $|2s\rangle$ -Zustand in den  $|1s\rangle$ -Zustand. Die Intensitätsverläufe der beiden Polarisationsgeometrien ähneln sich, sind jedoch zu frühen Zeiten nicht identisch. Die Population des  $|1s\rangle$ -Zustandes der kollinear (schwarz) zur Anregung polarisiert abstrahlt, baut sich etwas schneller auf als der komplementäre Anteil (blau). Im weiteren Verlauf verhalten sich die PL-Intensitäten ohne THz-Anregung gleich. Ein Anstieg der Intensität zu späten Zeiten wie bei den Verläufen mit THz-Anregung ist nicht vorhanden, da einzig durch die optische Anregung keine langlebigen, dunklen Zustände besetzt wurden.

Wird der zeitliche Abstand zwischen den beiden Anregungs-Impulsen etwas verlängert, so ist der in der mittleren Abbildung von Abbildung 5.13 gezeigte zeitliche Verlauf der  $|1s\rangle$ -PL zu beobachten. Während der Verlauf ohne zusätzliche THz-Anregung trivialerweise qualitativ dem bei gleichzeitiger Anregung (oben) entspricht, ist bei diesem Anregungsszenarium auch unter komplementär zur Anregung polarisierter Detektion (grün) ein Anstieg der  $|1s\rangle$ -PL zum Zeitpunkt der THz-Anregung zu erkennen. Gegenüber der kollinearen Detektionsgeometrie (rot) ist die maximale Intensität etwa um eine halbe Größenordnung schwächer. Der Verlauf zu größeren Zeiten ist qualitativ mit dem Verlauf bei gleichzeitiger Anregung (oben) vergleichbar.

Bei einem zeitlichen Abstand zwischen den beiden Anregungs-Impulsen von 200 ps (untere Abbildung 5.13) gleichen sich die jeweiligen Verläufe unter kollinear und komplementärer Detektionsgeometrie der Intensitäten mit und ohne THz-Anregung bis zum Zeitpunkt der THz-Anregung. Dabei steigen die Intensitäten unter kollinear Detektionsgeometrie (rot und schwarz) schneller an als die Intensitäten komplementär zur Anregung polarisiert. Zum Zeitpunkt der THz-Anregung, hier bei etwa 250 ps, nimmt die PL-Intensität des  $|1s\rangle$ -Zustandes infolge der Anregung in dunkle und höhere Zustände schnell ab. Dieser Einbruch ist für beide Polarisationsgeometrien qualitativ gleichmaßen zu beobachten.

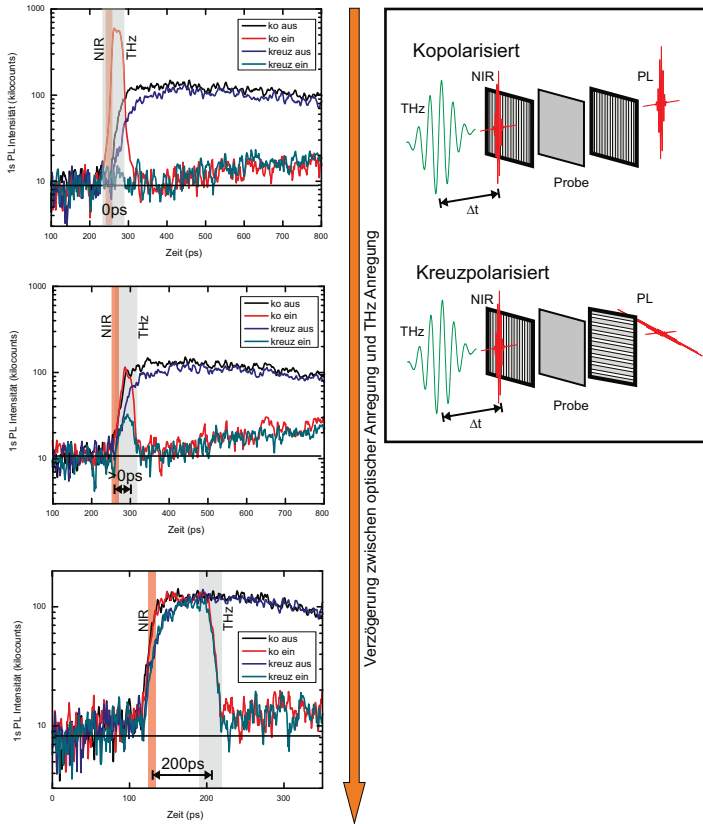
Diese Ergebnisse zeigen, dass der THz-induzierte Transfer aus dem  $|2s\rangle$ -Zustand in den  $|1s\rangle$ -Zustand für kurze Zeiten nach der optischen

Anregung polarisationserhaltend ist. Da die PL ein Phänomen der inkohärenten Population ist, in welcher durch Dephasierung die Polarisierung der Anregung nicht erhalten bleibt, können die Beobachtungen durch einen reinen Transfer der Population nicht erklärt werden.

In früheren Experimenten [113, 114, 115, 116] wurde eine Emission nach resonanter Anregung mit kohärenten Anteilen beobachtet. Diese sogenannte „secondary emission“ zerfällt in GaAs-Quantenfilmen mit einer Zeit von wenigen ps und wurde als Resultat der resonanten Rayleigh Streuung interpretiert. In [117] konnte theoretisch gezeigt werden, dass die „secondary emission“ nicht zwangsläufig mit der resonanten Rayleigh Streuung interpretiert werden kann, sondern ein fundamentales Resultat der Vielteilchenwechselwirkung des Exzitonensystems darstellt, welches auch in perfekten Strukturen ohne Fehlstellen oder Oberflächenrauigkeit auftritt. Die Zerfallszeiten betragen auch hier wenige ps und sind unter anderem abhängig von der Ladungsträgerdichte. Die Bildungszeiten betragen dabei wenige 100 fs nach der Anregung.

Die gefundenen Resultate lassen sich somit durch die anfängliche Superposition eines kohärenten Anteils der „secondary emission“ und eines inkohärenten Anteils der PL erklären. Da der inkohärente Anteil innerhalb der Dephasierungszeit der anfänglichen Polarisierung von bis zu wenigen ps bei resonanter Anregung aufgebaut wird, erscheinen bei gleichzeitiger Anregung ausschließlich die kohärenten Anteile der „secondary emission“. Zu etwas späteren Zeiten sind beide Anteile zu beobachten, jeweils der sich im Aufbau befindliche inkohärente Anteil der PL und der Abklingende Anteil der „secondary emission“. Zu späteren Zeiten jenseits der 10 ps ist ausschließlich der inkohärente Anteil erhalten geblieben und die  $|1s\rangle$ -PL zeigt keine ausgewiesene Polarisationsrichtung.

Der Übergang aus dem Regime der kohärenten „secondary emission“ in das der inkohärenten PL ist auch an den unterschiedlichen Anstiegszeiten der polarisationsabhängigen PL ohne THz-Anregung zu erkennen. Hier steigt der kollinear zu Anregung polarisierte Anteil der PL schneller an als der komplementäre Anteil.



**Abbildung 5.13** | Zeitlicher Verlauf der PL-Intensität bei der Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons nach der NIR-Anregung resonant zum  $|2s\rangle$ -Exziton. Zusätzlich ist der jeweilige Verlauf bei gleichzeitiger THz-Anregung resonant zum Übergangs  $|2s\rangle - |1s\rangle$  gezeigt. Die Detektion erfolgte dabei jeweils Ko- Kreuzpolarisiert zur NIR-Anregung.

In der oberen Darstellung erfolgt die NIR- und die THz-Anregung simultan. In der mittleren Darstellung erfolgt die THz-Anregung wenige ps nach der NIR-Anregung. In der unteren Darstellung liegen zwischen der NIR-Anregung und der THz-Anregung 200 ps. In rot (mit THz-Anregung) und in schwarz (ohne THz-Anregung) ist die zur NIR-Anregung kollinear polarisierte PL-Intensität gezeigt. In grün (mit THz-Anregung) und in blau (ohne THz-Anregung) ist die zur NIR-Anregung komplementär polarisierte PL-Intensität gezeigt.

### 5.3.2 Konversionseffizienz

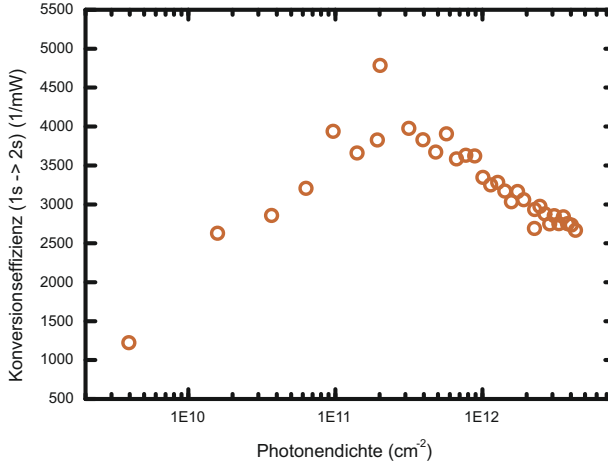
In den vorherigen Abschnitten konnte gezeigt werden, dass der durch Coulomb-Wechselwirkungen gemischte Zustand  $|2s\rangle - |2p\rangle$  durch eine THz-Anregung direkt in den  $|1s\rangle$ -Zustand überführt werden kann. Das Gleiche gilt auch für die Anregung aus dem  $|1s\rangle$ -Zustand in den gemischten  $|2s\rangle - |2p\rangle$ -Zustand. Die zugrundeliegenden Mechanismen für diese Konversion sind sehr komplex und dynamisch. Im Folgenden wird deshalb als überprüfbarer Parameter der Zusammenhang zwischen der Anregungsdichte und der Konversionseffizienz betrachtet.

In Abbildung 5.14 ist die Konversionseffizienz für den Transfer ausgehend aus dem  $|1s\rangle$ -Zustand in den  $|2s\rangle$ -Zustand in Abhängigkeit der optischen Anregungsdichte aufgetragen. Als Konversionseffizienz wird dabei das Verhältnis der durch die THz-Anregung erzeugten  $|2s\rangle$ -PL zur Anregungsleistung  $\frac{(I_{2sTHz} - I_{2s0})}{P_{opt}}$  definiert.

Die Konversionseffizienz steigt zunächst monoton über der logarithmischen Skala mit zunehmender Photonendichte an und erreicht bei einer Photonendichte von  $2 \cdot 10^{11}$  ihr Maximum. Im Anschluss nimmt die Konversionseffizienz ebenfalls monoton über der logarithmischen Skala ab. Der entsprechenden Betrachtung der inversen Anregesituation, die direkte optische Anregung des  $|2s\rangle$ -Zustandes und der THz-induzierte Transfer in den  $|1s\rangle$ -Zustand, ist in Abbildung 5.15 dargestellt. Die aufgetragene Konversionseffizienz ist definiert zu  $\frac{(I_{1sTHz} - I_{1s0})}{P_{opt}}$ . Zu erkennen ist ein Abfall der Konversionseffizienz mit zunehmender Anregungsdichte, welcher bei einer Anregungsdichte von  $10^{12}$  gegen Null konvergiert.

## 5.4 Kontrolle exzitonischer Systeme

Ein weiterer wichtiger Parameter für die Charakterisierung des betrachteten Systems ist der Einfluss der Feldstärke des anregenden



**Abbildung 5.14** | Konversionseffizienz des THz-induzierten Übergangs  $|1s\rangle \rightarrow |2s\rangle$  in Abhängigkeit der optischen Anregungsdichte.

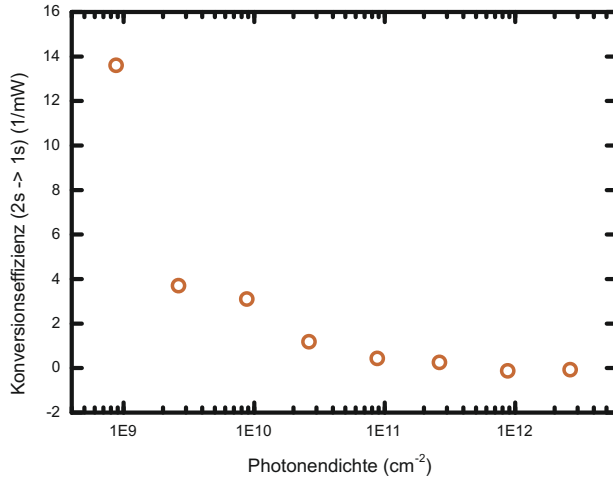
THz-Feldes.

In Abbildung 5.16 ist die Intensität der Photolumineszenz des  $|1s\rangle$ - und des  $|2s\rangle$ -Zustandes in Abhängigkeit der THz-Feldstärke dargestellt. Das System wurde optisch resonant zur  $|2s\rangle$ -Resonanz angeregt. Für die Auswertung wurde die PL-Intensität nur während der THz-Anregung betrachtet, dass bedeutet innerhalb eines Zeitfensters von etwa 30 ps.

Im ungestörten Zustand, wenn kein THz-Feld anliegt, befinden sich die Ladungsträger nahezu ausschließlich im  $|2s\rangle$ -Zustand, der  $|1s\rangle$ -Zustand ist quasi unbesetzt. Sobald die Feldstärke des THz-Feldes erhöht wird erfolgt ein angeregter Transfer aus dem  $|2s\rangle$ - in den  $|1s\rangle$ -Zustand, welcher mit zunehmender Feldstärke die PL-Intensität des  $|1s\rangle$ -Zustandes stark anwachsen lässt und die des  $|2s\rangle$ -Zustandes abnehmen lässt.

Zu erkennen ist deutlich, dass diese Zu- bzw. Abnahme bei einer Feldstärke von etwa 2.5 kV/cm ihr Maximum erreicht und mit weiter zu-





**Abbildung 5.15** | Konversionseffizienz des THz-induzierten Übergangs  $|2s\rangle \rightarrow |1s\rangle$  in Abhängigkeit der optischen Anregungsdichte.

nehmender Feldstärke einen oszillierenden Verlauf beschreibt. Die PL-Intensitäten der beiden Zustände verlaufen dabei deutlich antizyklisch mit einem Phasenversatz von  $\pi$ .

Der beobachtete Verlauf ist ein deutlicher Hinweis für eine induzierte Rabi-Oszillation, welche in ähnlicher Form bereits in Kapitel 4 beschrieben wurde. Im Gegensatz dazu zeigen diese Ergebnisse, dass die Rabi-Oszillation nicht nur zwischen den dipolerlaubten s- und p-artigen Zuständen induziert wird, sondern auch zwischen den beiden, normalerweise dipolverbotenen, s-artigen Zuständen. Dieser Effekt wurde in dieser Art bis jetzt in keinem anderen System beobachtet und ist ein Alleinstellungsmerkmal für exzitonische Systeme.

Die in Abbildung 5.16 gezeigten Intensitäten stellen die Ausgangssituation des Systems nach einer THz-Anregung dar. Das bedeutet, dass durch die Veränderung der Anregungsfeldstärke das System beliebig, innerhalb gewisser Grenzen, eingestellt werden kann. Die in Abbildung 5.16 eingezeichneten vertikal gestrichelten Linien kennzeichnen jeweils

eine Erhöhung der Impulsfläche des THz-Feldes um den Faktor  $\pi$ . Mit der erreichten Impulsfläche von  $> 3\pi$  lässt sich das Besetzungsverhältnis zwischen dem  $|2s\rangle$ - und  $|2p\rangle$ -Zustand kontrollieren und beliebig einstellen.

Im Nebenbild in Abbildung 5.16 ist die erreichte Impulsfläche in Abhängigkeit der Feldstärke aufgetragen. Aus dem linearen Zusammenhang zwischen der Rabi-Frequenz  $\Omega_{Rabi}$  und der Feldstärke  $E_{THz}$

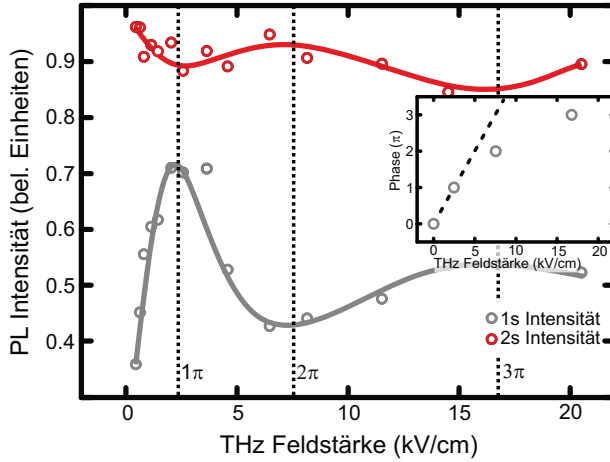
$$\Omega_{Rabi}(\vec{E}_{THz}) = \frac{\vec{d}_{2s,1s} \vec{E}_{THz}}{\hbar}$$

wäre im klassischen Fall auch ein linearer Anstieg der erreichten Impulsfläche in Abhängigkeit zur Feldstärke anzunehmen. Die in dem Nebenbild gezeigte diagonale, gestrichelte Linie zeigt jedoch, dass ein solcher Zusammenhang nicht besteht. Aus [118, 119] und Kapitel 4 ist bekannt, dass bei hohen Feldstärken die Wahrscheinlichkeit einer Mehrphotonenanregung in höhere und ionisierte Zustände auf Kosten des Rabi-Floppings des  $|1s\rangle$ - $|2p\rangle$ -Übergangs stark ansteigt. Das manifestiert sich hier in einer Abnahme der Rabi-Frequenz bei höheren Feldstärken. Die Ergebnisse der inversen Anregesituation sind in Abbildung 5.17 dargestellt. Hier erfolgt die optische Anregung resonant zum  $|1s\rangle$ -Zustand und die THz-Anregung resonant zum Übergang  $|1s\rangle \rightarrow |2s\rangle$ .

Auch hier zeigt sich eine antizyklische Besetzung der beiden Zustände, jedoch bei einer wesentlich geringeren Rabi-Frequenz. Erst bei einer Feldstärke von etwa 15 kV/cm erreicht das System einen invertierten Zustand der einer Impulsfläche von  $1\pi$  entspricht. Da keine Messwerte für höhere Feldstärken vorliegen, kann keine Aussage darüber getroffen werden, ob die zyklische Besetzung der Zustände bei steigender Feldstärke fortgesetzt werden würde.

Die Rabi-Frequenz beträgt etwa  $\frac{1}{6}$  der von dem System mit einem initial überwiegend besetzten  $|2s\rangle$ -Zustand.

Zusammenfassend konnte eine Rabi-Oszillation zwischen zwei s-artigen Zuständen nachgewiesen werden. Mit den zur Verfügung stehenden Feldstärken kann die Besetzung der beiden Zustände, innerhalb ge-

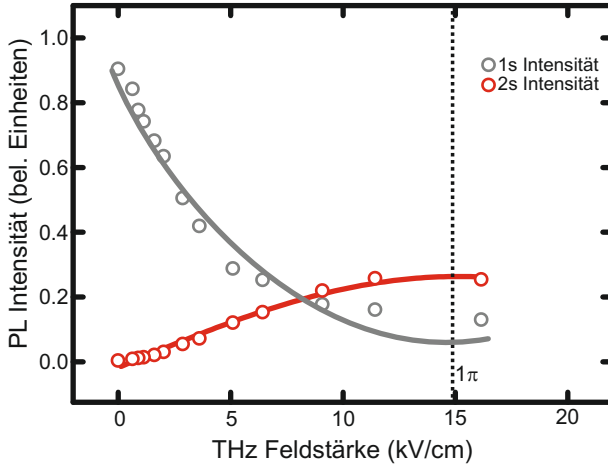


**Abbildung 5.16** | PL-Intensität bei resonanter, optischer Anregung in den  $|2s\rangle$ -Zustand und gleichzeitiger resonanter THz-Anregung des  $|2s\rangle$ - $|1s\rangle$ -Übergangs in Abhängigkeit der THz-Feldstärke. In rot ist die PL-Intensität bei der Energie des  $|2s\rangle$ -Exzitons, in grau die Intensität bei der Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons, dargestellt. Die Linien sind jeweils zur Verdeutlichung des Verlaufs gezeigt. Zur Orientierung sind in gestrichelten, vertikalen Linien jeweils die Bereiche gezeigt, bei der die Phase der Oszillation einen ganzzahligen Wert von  $\pi$  annimmt.

wisser Grenzen, beliebig eingestellt werden. Dies gilt sowohl für die Situation der initialen optischen Anregung des  $|1s\rangle$ - wie auch des  $|2s\rangle$ -Zustandes.

## 5.5 Mehr-Photonen-Anregung

Wie in Kapitel 4 gezeigt werden konnte, stehen in exzitonischen Systemen, unter intensiver THz-Anregung, große Kanäle für eine Mehrphotonenanregung zur Verfügung. Dies umfasst sowohl die Intranbandübergänge, wie auch die Interbandübergänge[90].



**Abbildung 5.17** | PL-Intensität bei resonanter optischer Anregung in den  $|1s\rangle$ -Zustand und gleichzeitiger resonanter THz-Anregung des  $|1s\rangle$ - $|2s\rangle$ -Übergangs in Abhängigkeit der THz-Feldstärke. In rot ist die PL-Intensität bei der Energie des  $|2s\rangle$ -Exzitons und in grau die Intensität bei der  $|1s\rangle$ -Energie dargestellt. Die Linien sind jeweils zur Verdeutlichung des Verlaufs gezeigt. Zur Orientierung ist der Bereich, in dem die Phase einer hypothetischen Oszillation den Wert  $1\pi$  annimmt, mit einer vertikalen, gestrichelten Linie gekennzeichnet.

Durch die schmalbandige Emission der THz Strahlung des hier verwendeten FELs, können Mehrphotonenprozesse unter unterschiedlichen Anregungs-Szenarien systematisch untersucht werden.

Im Folgenden werden gekoppelte NIR- und THz-Anregungen unter Beteiligung von Mehrphotonenprozessen gezeigt. Untersucht werden diese Prozesse in ihrer Abhängigkeit von den beteiligten Feldstärken und der Verstimmung der NIR-Anregung gegenüber der exzitonen Resonanz.

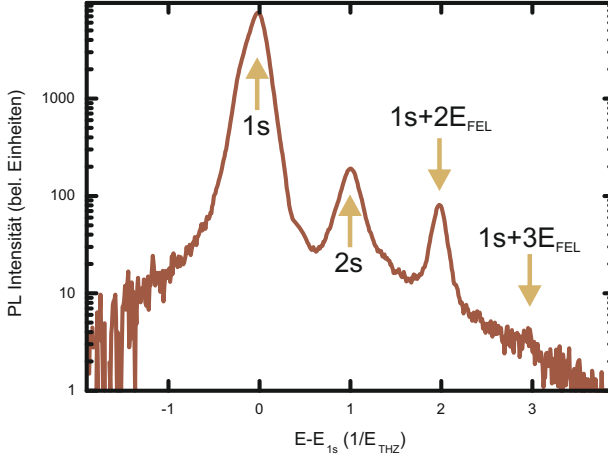
In Abbildung 5.18 ist das PL-Spektrum einer GaAs-Quantenfilmprobe (DBR42) unter dem Einfluss einer NIR-Anregung, resonant zur exzitonen  $|1s\rangle$ -Resonanz und bei gleichzeitiger THz-Anregung, resonant

zum  $|1s\rangle$ - $|2s\rangle$ -Übergang gezeigt. Das Spektrum bildet den Zeitraum während der THz-Anregung ab, also ein Zeitfenster von etwa 30 ps. Deutlich zu erkennen ist die  $|1s\rangle$ -Resonanz, direkt angeregt durch den hierzu resonanten optische Impuls. Diese  $|2s\rangle$ -Resonanz resultiert aus dem bereits in Abschnitt 5.1 beschriebenen, eigentlich dipolverbotenen, THz-induzierten  $|1s\rangle$ - $|2s\rangle$ -Übergang. Darüber hinaus ist ebenfalls deutlich eine Resonanz bei der Energie  $E_{1s} + 2E_{THz}$  sowie eine kleine Signatur bei der Energie  $E_{1s} + 3E_{THz}$  zu erkennen.

Obwohl die Resonanz bei  $E = E_{1s} + E_{THz}$  nur über die Beteiligung von 2 THz-Photonen zu erreichen ist, ist die PL-Intensität nur um den Faktor 2,5 schwächer als die Intensität der  $|2s\rangle$ -Resonanz. Zum Einen lässt sich dies durch die bereits angesprochenen großen Kanäle für eine Mehrphotonen-Absorption in exzitonsichen System und zum Anderen durch die Tatsache begründen, dass dieser Zustand nicht dipolverboten ist. Durch die Beteiligung von insgesamt 3 Photonen - einem im NIR Bereich und zwei im THz-Bereich - kann die Bahndrehimpulsquantenzahl direkt aus den beteiligten Drehimpulsen der Photonen konstruiert werden. Die Ladungsträger der  $2s,p$ -Resonanz sind über die beiden Drehimpulsquantenzahlen verteilt, von welchen ausschließlich die  $s$ -artigen Anteile direkt strahlend rekombinieren und sichtbar sind. Die  $p$ -artigen Anteile des gemischten Zustandes sind im PL-Spektrum nicht direkt zu detektieren und tragen somit nicht zur PL-Signatur bei. Aus [5] ist bekannt, dass die Verteilung der  $s$ - und  $p$ -artigen Anteile durchaus im Bereich 1:1 liegt. Somit sind nur die Hälfte der Ladungsträger der  $|2s\rangle - |2p\rangle$ -Resonanz sichtbar.

Die Resonanz bei der Energie  $E = E_{1s} + 3E_{THz}$  ist dementsprechend im PL-Spektrum sehr viel schwächer ausgeprägt. Die Intensität beträgt nur das 0,1-fache der Intensität bei der Energie  $E = E_{1s} + 2E_{THz}$ . Zum Einen handelt es sich hierbei um einen 4-Photonen-Prozess, welcher entsprechend unwahrscheinlicher als ein 3-Photonen-Prozess ist. Zum Anderen lässt sich durch diese Anregung kein  $s$ -artiger Zustand direkt erreichen. Die Anregung kann nur aus dem  $s$ -artigen Anteil des  $|2s\rangle$ -Zustandes über einen 2-Photonen-Prozess wieder in einen  $s$ -artigen Zustand führen. Der Wirkungsquerschnitt ist dementspre-

chend geringer. Da diese Betrachtung rein phänomenologisch ist und, wie erwähnt, die Dynamik des exzitonischen Systems stark durch den Vielteilchencharakter geprägt ist, bedarf es an dieser Stelle einer tiefgreifenden Modellrechnung. Leider liegt diese nicht vor, um die gefundenen Resultate stichhaltig zu hinterlegen.



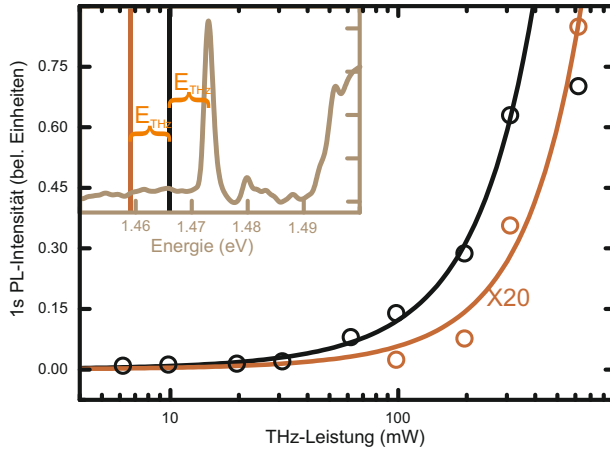
**Abbildung 5.18** | Spektraler Verlauf der PL-Intensität bei resonanter NIR-Anregung in den  $|1s\rangle$ -Exziton-Zustand kurz nach der zusätzlichen THz-Anregung mit der Energie des Übergangs  $|1s\rangle \rightarrow |2s\rangle$ . Zusätzlich markiert sind die Bereiche, die einer zwei- bzw. drei-THz-Photon-Anregung entspricht.

Eine weitere Anregungssituation stellt die Verstimmung der optischen Anregung in den niederenergetischen Bereich dar. Dabei liegt die Photonenenergie unterhalb der Energie der  $|1s\rangle$ -Resonanz. Die Anregung der Resonanz erfolgt gekoppelt mit der simultanen THz-Anregung über einen zwei- bzw. drei Photonenprozess.

In Abbildung 5.19 ist die PL-Intensität der  $|1s\rangle$ -Resonanz in Abhängigkeit der THz-Leistung aufgetragen. Die optische Anregungsleistung blieb jeweils mit 6 mW konstant. In schwarz ist die PL-Intensität bei einer Energie der optischen Photonen von  $E_{opt} = E_{1s} - 1E_{THz}$  und

in orange entsprechend die Intensität bei einer Energie von  $E_{opt} = E_{1s} - 2E_{THz}$  gezeigt. Die Anregung erfolgt dementsprechend unter der Beteiligung von mindestens einem bzw. von mindestens zwei THz-Photonen. In der Nebenabbildung ist zur Verdeutlichung das Absorptionsspektrum der verwendeten Probe (DBR42) sowie die Energien der optischen Anregung gezeigt.

Zu erkennen ist ein quadratischer Anstieg der PL-Intensität in Abhängigkeit der eingestrahlichten THz-Leistung. Dabei zeigen die Kurven für die um die einfache bzw. zweifache Energie der THz-Photonen verstimimte optische Anregungsenergie qualitativ den gleichen Verlauf, die PL-Intensität für die Anregung unter der Beteiligung von 2 THz-Photonen ist jedoch etwa um den Faktor 20 über den gesamten Bereich kleiner als die Intensität bei der Anregung unter der Beteiligung von einem THz-Photon.

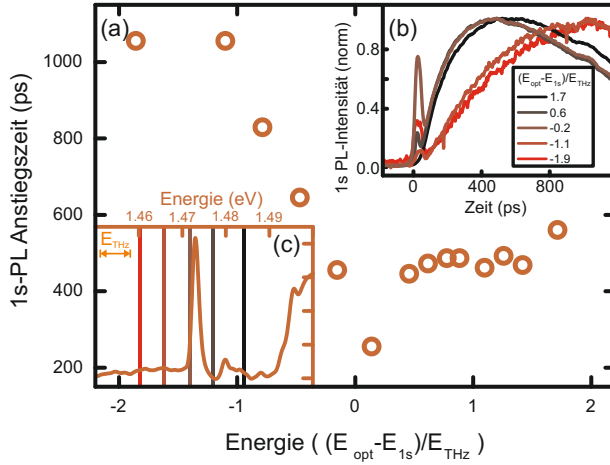


**Abbildung 5.19** | PL-Intensität bei der Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons in Abhängigkeit von der THz-Leistung bei gleichzeitiger NIR- und THz-Anregung. Die Energie der NIR-Photonen ist um die einfache Energie der THz-Photonen kleiner als die Energie des  $|1s\rangle$ -Exziton-Zustandes  $E_{NIR} = E_{1s} - E_{THz}$ .

Für das genauere Verständnis der Anregesituation bei einer nieder- bzw. hochenergetisch verstimnten, optischen Anregungsenergie ist in Abbildung 5.20 die Anstiegszeit der  $|1s\rangle$ -PL bei verschiedenen Anregungsenergien gezeigt. Dazu wurde die verwendete Probe (DBR42) synchron mit einem THz- und einem NIR-Impuls angeregt. Die Energie der THz-Photonen wurde resonant zum  $|1s\rangle$ - $|2p\rangle$ -Übergang eingestellt, die Energie der NIR-Photonen wurde entsprechend variiert. In der Hauptabbildung (a) ist die Anstiegszeit in Abhängigkeit der optischen Anregungsenergie gezeigt. Die Anregungsenergie ist in Einheiten der Energie der THz-Photonen relativ zu der Energie der  $|1s\rangle$ -Resonanz angegeben. Im Falle der resonanten Anregung der  $|1s\rangle$ -Resonanz besitzt die Anstiegszeit ein Minimum von etwa 210 ps. Oberhalb der Energie der  $|1s\rangle$ -Resonanz ist die Anstiegszeit mit etwa 420 ps konstant und unabhängig von der optischen Anregungsenergie. Unterhalb der Energie der  $|1s\rangle$ -Resonanz steigt die Anstiegszeit mit abnehmender Energie zunächst an und erreicht ihr Maximum von etwa 1020 ps bei einer Verstimmung der optischen Anregungsenergie um die einfache Energie des  $1s$ - $2p$ -Überganges bzw. bei der eingestellten Energie der THz-Photonen  $E_{THz}$ . Zu noch niedrigeren Energien bleibt die Anstiegszeit konstant.

In der Nebenabbildung (b) ist der zeitliche Verlauf der  $|1s\rangle$ -PL einiger exemplarischer Anregungssituationen gezeigt. Zu erkennen ist bei allen Verläufen ein mehr oder weniger ausgeprägter residualer Streulichtanteil zum Zeitpunkt der Anregung. Die  $|1s\rangle$ -PL steigt für Anregungsenergien oberhalb der Energie der  $|1s\rangle$ -Resonanz innerhalb von etwa 400 ps an, für Anregungsenergien unterhalb der  $|1s\rangle$ -Energie beträgt die Anstiegszeit etwa 1 ns. In der Nebenabbildung (c) ist zur Veranschaulichung das Absorptionsspektrum der verwendeten Probe (DBR42) gezeigt. Die farbigen, vertikalen Linien kennzeichnen jeweils die Anregungsenergien der in der Nebenabbildung (b) dargestellten Verläufe.





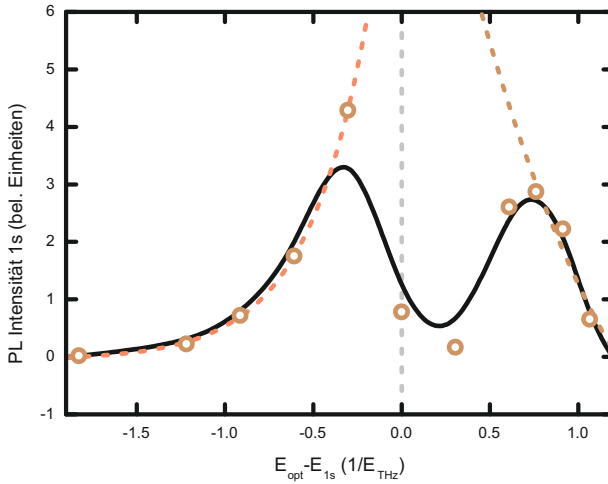
**Abbildung 5.20** | (a) PL-Intensität bei der Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons in Abhängigkeit von der optischen Anregungsenergie bei gleichzeitiger NIR- und THz-Anregung. (b) Zeitlicher Verlauf der  $|1s\rangle$ -PL bei unterschiedlichen optischen Anregungsenergien. (c) Absorptionsspektrum der verwendeten Probe (DBR42). Die vertikalen Linien kennzeichnen die Anregungsenergie zu den in (b) gezeigten zeitlichen Verläufe.

Die aus den verschiedenen optischen Anregungsenergien resultierende Konversionseffizienzen sind in Abbildung 5.21 dargestellt. Aufgetragen ist jeweils die PL-Intensität des  $|1s\rangle$ -Exzitons in Abhängigkeit der optischen Anregungsenergie. Die mittlere Leistung der THz- (2,7 W) sowie die optische-Anregung (1 mW) wurden jeweils bei allen Anregungssituationen konstant gehalten.

Die optische Anregungsenergie ist in Einheiten der Energie der THz-Photonen relativ zur Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons angegeben.

Die PL-Intensität steigt zunächst exponentiell mit zunehmender Anregungsenergie an. Im Bereich der Energie der  $|1s\rangle$ -Resonanz erfährt die gemessene PL-Intensität einen abrupten Einbruch durch die Verluste der durch die THz-Anregung induzierte Anregung in den  $|2s\rangle$ -

Zustand. Zu höheren Anregungsenergien wird dieser Übergang zunehmend nicht resonant gegenüber der THz-Photonenenergie. Die PL-Intensität des  $1s$ -Exzitons steigt hier zunächst an und erreicht bei einer Anregungsenergie von  $0,7 E_{THz}$  ein lokales Maximum. Im Bereich der  $|2s\rangle$ -Energie erfährt die  $|1s\rangle$ -PL abermals einen Einbruch. Zwar wird in diesem Fall der  $|2s\rangle$ -Zustand resonant angeregt und durch das eingestrahelte, resonante THz-Feld wird der  $|1s\rangle$ -Zustand besetzt, durch die hohe THz-Feldstärke wird diese Population jedoch aus diesem Zustand wieder in höhere Zustände angeregt. Die Situation entspricht der in Abbildung 5.12 dargestellten Situation.



**Abbildung 5.21** | PL-Intensität bei der Energie des  $|1s\rangle$ -Exzitons in Abhängigkeit von der Energie der NIR-Photonen bei gleichzeitiger THz-Anregung. Die schwarze Linie dient zur Verdeutlichung des Verlaufs. Die orangenen, gestrichelten Linien stellen jeweils eine exponentielle Anpassung an den Teilbereich der Messwerte dar. Die graue, gestrichelte, vertikale Linie markiert die Energie des  $|1s\rangle$ -Exziton-Zustandes.

## 5.6 Zusammenfassung

Der theoretisch beschriebene Mischcharakter der exzitonicen  $|2p\rangle$ - und  $|2s\rangle$ -Zustände konnte hier das erste mal experimentell nachgewiesen werden. Dazu wurde zunächst eine inkohärente, exzitoniche Population im  $|1s\rangle$ -Zustand optisch erzeugt. Durch eine Anregung im THz-Frequenz-bereich wurde diese Population über eine Intra-band-anregung in den gemischten  $|2p\rangle$ - $|2s\rangle$ -Zustand angehoben. Durch die Vermessung der abgestrahlten Photolumineszenz der Rekombination der  $|2s\rangle$ -Exzitonen mit dem p-artigen Vakuumzustand konnte dieser Transfer nachgewiesen werden.

Durch die gleichzeitige Anregung im optischen-, wie auch im THz-Frequenz-bereich konnte dieser Transfer auch für eine kohärente exzitoniche Polarisierung nachgewiesen werden. Der experimentelle Nachweis erfolgte über die Vermessung der „secondary emission“, welche ein kohärentes Phänomen der Photolumineszenz darstellt. Dabei konnte ein Rabi-Flopping zwischen den Zuständen beobachtet werden, bei welchen Pulsflächen von mehr als  $3\pi$  erreicht werden konnten. Darüber hinaus konnten mehrere Aspekte der Mehrphotonenanregung exzitonicer Zustände charakterisiert werden.



## 6 ZUSAMMENFASSUNG

Durch die fortschreitende Entwicklung starker, gepulster THz-Quellen in den letzten Jahren besteht die Möglichkeit, gezielt die Dynamik exzitonischer Systeme zu manipulieren. Von besonderem Interesse ist in diesem Fall die große Analogie zu bekannten atomaren Systemen. Die Manipulation atomarer Systeme ist seit Jahrzehnten eine angewandte Technik, angefangen mit der Nutzung der Fluoreszenz oder der Phosphoreszenz bis hin zur Präparation und Verschränkung einzelner Atome zu QBits. Ziel dieser Arbeit ist die Untersuchung analoger Prozesse und Phänomene in exzitonischen Ensembles.

Für die Generation starker THz-Impulse stehen mehrere etablierte Methoden zur Verfügung. Speziell für die Generation mittels verstärkter fs-Laserimpulse hat sich die Methode der optischen Gleichrichtung in  $LiNbO_3$ -Kristallen etabliert. Durch die großen Unterschiede der beteiligten Brechungsindizes erfolgt die Generation in der sogenannten Cherenkov-Geometrie. Die hohe Absorption von  $LiNbO_3$  innerhalb des THz-Frequenzbereiches bedingt einen hohen Leistungsverlust während der Generation. Dabei ist die Wegstrecke innerhalb des Kristalls entscheidend. Um diese Wegstrecke zu minimieren wurde eine neue Geometrie entwickelt und realisiert. Dabei erfolgt die Generation der THz-Impulse weiterhin innerhalb eines  $LiNbO_3$ -Kristalls, die Auskopplung der Impulse erfolgt jedoch nicht direkt in den freien Raum, sondern unmittelbar nach der Generation in ein  $Si$ -Prisma. Somit konnte eine lange Wegstrecke innerhalb des Kristalls durch eine Wegstrecke durch das  $Si$ -Prisma ersetzt werden. Da die Absorption des  $Si$  etwa um den Faktor 1000 geringer ist als die von  $LiNbO_3$  können durch diese Geometrie die Verluste reduziert werden. Durch den

Einsatz eines Laserverstärkersystems konnten so Feldstärken von über 50 kV/cm erreicht werden. Das erzeugte THz-Spektrum reicht von einer Frequenz von 0,2 THz bis 3 THz und ist damit mehrere Oktaven breit. Es konnte ein homogenes Abstrahlprofil gezeigt werden, welches auf eine gute Fokussierbarkeit schließen lässt.

Mittels gepulster THz-Strahlung wurde die Dynamik einer exzitonischen Polarisation in einer Ga(In)As-Halbleiterprobe untersucht. Dabei konnte erstmals eine Rabi-Oszillation zwischen den exzitonischen  $|1s\rangle$ - und  $|2p\rangle$ -Zuständen initiiert werden. Dieser intraexzitonische Autler-Townes Effekt ist überlagert durch Anregungsprozessen in höhere Zustände bis hin zu exzitonischen Ionisationszuständen. Es konnte der ausgeprägte Vielteilchencharakter einer exzitonischen Polarisation gezeigt werden. Ohne diesen konnten die großen Anregungskanäle in höhere Zustände nicht erklärt werden. Durch eine theoretische Analyse konnte die zugrundeliegende kohärente Dynamik dieser Anregungssituation beschrieben werden. Dabei konnte gezeigt werden, dass das oftmals in der Literatur vorherrschende vereinfachte Zweiniveaumodell für die Beschreibung exzitonischer Zustände in diesem Fall versagt und im allgemeinen Fall unzutreffend ist.

Durch den Einsatz einer schmalbandigen, starken THz-Quelle konnten exzitonische Übergänge gezielt angeregt werden und Zustände gezielt präpariert werden. Dabei konnten insbesondere die exzitonischen  $|1s\rangle$ - und  $|2s\rangle$ -Zustände besetzt werden.

Durch die Messung der dynamischen optischen Antwort des Systems konnte erstmals der eigentlich dipolverbotenen  $|1s\rangle$ - $|2s\rangle$  Übergang gezeigt werden. Dies ist eine direkte Folge aus dem Vielteilchencharakter der exzitonischen Polarisation. Durch die Coulomb-Streuprozesse bilden die beiden  $|2p\rangle$ - und  $|2s\rangle$ -Zustände kein orthogonales System und können ineinander übergehen.

Durch die gezielte Besetzung optisch dunkler Zustände konnte die Lumineszenz des Systems für einen kurzen Zeitraum ausgelöscht werden, bevor der optisch aktive Zustand durch die erneute Besetzung strahlend zerfällt. Dieses „shelving“ wurde erstmals durch die gezielte Anregung im THz-Regime initiiert.

Durch die Messung der Dynamik der Polarisierung der optischen Lumineszenz nach der Präparation durch eine THz-Anregung konnte die „secondary emission“ einer exzitonischen Polarisierung beobachtet werden.

Mittels einer schmalbandigen THz-Anregung konnte eine Rabi-Oszillation zwischen den  $|1s\rangle$ - und  $|2s\rangle$ -Zuständen erzeugt werden. Dies zeigt, dass die beiden  $|2p\rangle$ - und  $|2s\rangle$  Zustände nicht nur durch Streuung ineinander übergehen können, sondern generell einen gemeinsamen, gemischten Zustand beschreiben.

Zusammenfassend konnte gezeigt werden, dass es generell möglich ist exzitonische Systeme mittels THz-Impulsen gezielt zu manipulieren. Die Vielteilchenwechselwirkungen ermöglichen dabei Übergänge in sehr hohe Quantenzustände über die Beteiligung mehrerer Photonen und die direkte Vermischung quantenmechanischer Zustände. Das Potential dieser Erkenntnisse ist schwer vorherzusehen, da es sich um ein sehr junges Forschungsgebiet handelt. Durch die gezielte Kontrolle solcher Systeme sind viele, zukunftsweisende Anwendungen denkbar. Welche sich tatsächlich realisieren lassen hängt stark von dem Verständnis dieser Systeme ab.





## LITERATUR

- [1] I. Galbraith, R. Chari, S. Pellegrini u. a. „Excitonic signatures in the photoluminescence and terahertz absorption of a  $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$  multiple quantum well“. In: *Physical Review B* 71.7 (2005), S. 073302.
- [2] R. Huber, R. Kaindl, B. Schmid u. a. „Broadband terahertz study of excitonic resonances in the high-density regime in  $GaAs/Al_xGa_{1-x}As$  quantum wells“. In: *Physical Review B* 72.16 (2005), S. 161314.
- [3] R. Kaindl, D. Hägele, M. Carnahan u. a. „Transient terahertz spectroscopy of excitons and unbound carriers in quasi-two-dimensional electron-hole gases“. In: *Physical Review B* 79.4 (2009), S. 045320.
- [4] R. A. Kaindl, M. A. Carnahan, D. H. Aumle u. a. „Ultrafast terahertz probes of transient conducting and insulating phases in an electron-hole gas“. In: *Nature* 423.6941 (2003), S. 734–738.
- [5] M. Kira und S. Koch. „Exciton-Population Inversion and Terahertz Gain in Semiconductors Excited to Resonance“. In: *Physical Review Letters* 93.7 (2004), S. 076402.
- [6] K. Nordstrom, K. Johnsen, S. Allen u. a. „Excitonic Dynamical Franz-Keldysh Effect“. In: *Physical Review Letters* 81.2 (1998), S. 457–460.

- [7] J. Danielson, Y.-S. Lee, J. Prineas u. a. „Interaction of Strong Single-Cycle Terahertz Pulses with Semiconductor Quantum Wells“. In: *Physical Review Letters* 99.23 (2007), S. 237401.
- [8] R. Huber, B. Schmid, Y. Shen u. a. „Stimulated Terahertz Emission from Intraexcitonic Transitions in  $Cu_2O$ “. In: *Physical Review Letters* 96.1 (2006), S. 017402.
- [9] P. Y. Yu und M. Cardona. *Fundamentals of semiconductors: physics and materials properties*. 2010.
- [10] M. Kira und S. W. Koch. „Many-body correlations and excitonic effects in semiconductor spectroscopy“. In: *Progress in quantum electronics* 30.5 (2006), S. 155–296.
- [11] H. Haug und S. W. Koch. *Quantum theory of the optical and electronic properties of semiconductors; 5th ed.* Singapore: World Scientific, 2009.
- [12] W. D. Rice, J. Kono, S. Zybelle u. a. „Observation of Forbidden Exciton Transitions Mediated by Coulomb Interactions in Photoexcited Semiconductor Quantum Wells“. In: *Phys. Rev. Lett.* 110 (März 2013), S. 137404.
- [13] K. F. Kwong, D. Yankelevich, K. C. Chu u. a. „400-Hz mechanical scanning optical delay line“. In: *Optics Letters* 18.7 (1993), S. 558–560.
- [14] G. J. Tearney, B. E. Bouma und J. G. Fujimoto. „High-speed phase-and group-delay scanning with a grating-based phase control delay line“. In: *Optics Letters* 22.23 (1997), S. 1811–1813.
- [15] A. Matsko, D. Strekalov und L. Maleki. „On the dynamic range of optical delay lines based on coherent atomic media“. In: *Opt Express* 13.6 (März 2005), S. 2210–2223.
- [16] F. C. Grum und K. D. Mielenz. *Measurement of photoluminescence*. Academic Pr, 1982.

- [17] M. A. Case und B. C. Stout. *Photoluminescence*. Applications, Types and Efficacy. Nova Science Publishers, 2012.
- [18] D. Phillips, R. Drake, D. O'Connor u. a. „Time correlated single-photon counting (TCSPC) using laser excitation“. In: (1985).
- [19] J. R. Lakowicz. *Principles of Fluorescence Spectroscopy*. Springer, 2009.
- [20] M. Biyajima, M. Kaneyama, Y. Kurashima u. a. „Analysis of distribution of cosmic microwave background photon in terms of non-extensive statistics and formulas with temperature fluctuation“. In: *arXiv.org* cond-mat.stat-mech (2004).
- [21] B. G. Sidharth. „The Thermodynamic Universe“. In: *arXiv.org* physics.gen-ph (2008).
- [22] M. Piat, G. Lagache, J. P. Bernard u. a. „Cosmic Background dipole measurements with Planck-High Frequency Instrument“. In: *arXiv.org* astro-ph (2001).
- [23] C. Jördens und M. Koch. „Detection of foreign bodies in chocolate with pulsed terahertz spectroscopy“. In: *Optical Engineering* 47.3 (2008), S. 037003–037003.
- [24] J. L. Kloosterman, D. J. Hayton, Y. Ren u. a. „Hot electron bolometer heterodyne receiver with a 4.7-THz quantum cascade laser as a local oscillator“. In: *arXiv.org* astro-ph.IM (2012).
- [25] T. Grange. „Nanowire terahertz quantum cascade lasers“. In: *arXiv.org* cond-mat.mes-hall (2013).
- [26] C. Jirauschek. „Monte Carlo study of carrier-light coupling in terahertz quantum cascade lasers“. In: *arXiv.org* cond-mat.mes-hall (2011).
- [27] J. A. Swegle, J. W. Poukey und G. T. Leifeste. „Backward wave oscillators with rippled wall resonators: Analytic theory and numerical simulation“. In: *Physics of Fluids* 28 (1985), S. 2882.
- [28] G. Kantorowicz und P. Palluel. „Backward wave oscillators“. In: 1 (1979), S. 185–212.

- [29] S. Pilla. *Enhancing the photomixing efficiency of optoelectronic devices in the terahertz regime*. Techn. Ber. 2007.
- [30] P. U. Jepsen, R. H. Jacobsen und S. R. Keiding. „Generation and detection of terahertz pulses from biased semiconductor antennas“. In: *JOSA B* 13.11 (1996), S. 2424–2436.
- [31] D. H. Auston, K. P. Cheung und P. R. Smith. „Picosecond photoconducting Hertzian dipoles“. In: *Applied Physics Letters* 45 (1984), S. 284.
- [32] M. Awad, M. Nagel und H. Kurz. „LT-GaAs Based Photoconductive Antenna Arrays For Pulsed And CW Operation“. In: (2006), S. 49–49.
- [33] A. Dreyhaupt, S. Winnerl, T. Dekorsy u. a. „High-intensity terahertz radiation from a microstructured large-area photoconductor“. In: *Applied Physics Letters* 86.12 (2005), S. 121114.
- [34] M. Beck, H. Schäfer, G. Klatt u. a. „Impulsive terahertz radiation with high electric fields from an amplifier-driven large-area photoconductive antenna“. In: *Optics Express* 18.9 (2010), S. 9251.
- [35] F. J. Low. „Low-temperature germanium bolometer“. In: *JOSA* 51.11 (1961), S. 1300–1304.
- [36] A. van Kolck, M. Amanti, M. Fischer u. a. „Thermo-optic detection of terahertz radiation from a quantum cascade laser“. In: *Applied Physics Letters* 97.25 (2010), S. 251103–251103.
- [37] G. Medhi, A. V. Muravjov, H. Saxena u. a. „Infrared intracavity laser absorption spectrometer“. In: *SPIE Defense, Security, and Sensing*. International Society for Optics und Photonics. 2010, 76800N–76800N.
- [38] Q. Wu und X.-C. Zhang. „Free-space electro-optic sampling of terahertz beams“. In: *Applied Physics Letters* 67.24 (1995), S. 3523–3525.

- [39] J. Shan, A. S. Weling, E. Knoesel u. a. „Single-shot measurement of terahertz electromagnetic pulses by use of electro-optic sampling“. In: *Optics Letters* 25.6 (2000), S. 426–428.
- [40] G. Gallot und D. Grischkowsky. „Electro-optic detection of terahertz radiation“. In: *JOSA B* 16.8 (1999), S. 1204–1212.
- [41] J. Valdmanis und G. Mourou. „Subpicosecond electrooptic sampling: principles and applications“. In: *Quantum Electronics, IEEE Journal of* 22.1 (1986), S. 69–78.
- [42] P. Michel, H. Buettig, F. Gabriel u. a. „The Rossendorf IR-FEL ELBE“. In: *Proc. FEL*. 2006, S. 488.
- [43] F. Gabriel, P. Gippner, E. Grosse u. a. „The Rossendorf radiation source ELBE and its FEL projects“. In: *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 161 (2000), S. 1143–1147.
- [44] K. Fahmy, G. Furlinski, P. Gippner u. a. „Properties and Planned Use of the Intense THz Radiation from ELBE at Dresden-Rossendorf“. In: *Journal of biological physics* 29.2-3 (2003), S. 303–307.
- [45] Träger, Hrsg. *Handbook of Lasers and Optics*. Springer, New York, 2007.
- [46] D. Strickland und G. Mourou. „Compression of amplified chirped optical pulses“. In: *Optics Communications* 55.6 (1985), S. 447–449.
- [47] D. R. Herriott und H. J. Schulte. „Folded Optical Delay Lines“. In: *Applied Optics* 4.8 (1965), S. 883–889.
- [48] F. Träger. *Springer handbook of lasers and optics*. 2007.
- [49] M. Oberthaler und R. A. Hopfel. „Special narrowing of ultrashort laser pulses by self-phase modulation in optical fibers“. In: *Applied Physics Letters* 63.8 (1993), S. 1017–1019.

- [50] H. Nishioka, W. Odajima, K.-i. Ueda u. a. „Ultrabroadband flat continuum generation in multichannel propagation of terawatt Ti:sapphire laser pulses“. In: *Opt. Lett* 20.24 (Dez. 1995), S. 2505–2507.
- [51] M. D. Perry, T. Ditmire und B. C. Stuart. „Self-phase modulation in chirped-pulse amplification“. In: *Optics Letters* 19.24 (1994), S. 2149–2151.
- [52] C.-P. Chiou, J. L. Blackshire und R. B. Thompson. „Terahertz ray system calibration and material characterizations“. In: *AIP Conference Proceedings* 1096.1 (2009), S. 410–417.
- [53] H. Zhang, P. Guo, P. Chen u. a. „Liquid-crystal-filled photonic crystal for terahertz switch and filter“. In: *Journal of the Optical Society of America B* 26.1 (2009), S. 101–106.
- [54] J. Hebling, A. G. Stepanov, G. Almási u. a. „Tunable THz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts“. In: *Applied Physics B-Lasers And Optics* 78.5 (2004), S. 593–599.
- [55] J. Hebling, K. L. Yeh, M. C. Hoffmann u. a. „Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities“. In: *Journal of the Optical Society of America B* 25.7 (2008), S. 6–19.
- [56] Y. Shen, T. Watanabe, D. Arena u. a. „Nonlinear Cross-Phase Modulation with Intense Single-Cycle Terahertz Pulses“. In: *Physical Review Letters* 99.4 (2007), S. 043901.
- [57] A. G. Stepanov, J. Hebling und J. Kuhl. „Efficient generation of subpicosecond terahertz radiation by phase-matched optical rectification using ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts“. In: *Applied Physics Letters* 83 (2003), S. 3000.
- [58] B. Bartal, I. Z. Kozma, A. G. Stepanov u. a. „Toward generation of  $\mu\text{J}$  range sub-ps THz pulses by optical rectification“. In: *Applied Physics B* 86.3 (2007), S. 419–423.

- [59] A. G. Stepanov, J. Kuhl, I. Z. Kozma u. a. „Scaling up the energy of THz pulses created by optical rectification“. In: *Applied Physics Letters* 56 (1990), S. 506–508.
- [60] K.-L. Yeh, J. Hebling, M. C. Hoffmann u. a. „Generation of high average power 1 kHz shaped THz pulses via optical rectification“. In: *Optics Communications* 281.13 (2008), S. 3567–3570.
- [61] K. L. Yeh, M. C. Hoffmann, J. Hebling u. a. „Generation of 10  $\mu$ J ultrashort terahertz pulses by optical rectification“. In: *Applied Physics Letters* 90 (2007), S. 171121.
- [62] U. Fromme. *High Power THz Generation in Lithium Niobate using a Cherenkov-Type Geometry*. 2011.
- [63] D. H. Auston, K. P. Cheung, J. A. Valdmanis u. a. „Cherenkov radiation from femtosecond optical pulses in electro-optic media“. In: *Physical Review Letters* 53.16 (1984), S. 1555–1558.
- [64] P. A. Cherenkov. „Visible emission of clean liquids by action of  $\text{C}\ddot{\text{e}}$  radiation“. In: *Doklady Akademii Nauk SSSR* 2 (1934), S. 451.
- [65] D. F. Alferov, Y. A. Bashmakov, K. A. Belovintsev u. a. „The undulator as a source of electromagnetic radiation“. In: *Part Accel* 9 (1979), S. 223.
- [66] V. Koch, A. Majumder und X.-N. Wang. „Cherenkov radiation from jets in heavy-ion collisions“. In: *Physical Review Letters* 96.17 (2006), S. 172302.
- [67] J. Hebling, G. Almasi, I. Z. Kozma u. a. „Velocity matching by pulse front tilting for large area THz-pulse generation“. In: *Opt. Express* 10.21 (2002), S. 1161–1166.
- [68] P. Liu, D. Xu, C. Liu u. a. „p-polarized Cherenkov THz wave radiation generated by optical rectification for a Brewster-cut  $\text{LiNbO}_3$  crystal“. In: *Journal of Optics* 13.8 (2011), S. 085202.

- [69] K. Suizu, K. Koketsu, T. Shibuya u. a. „Extremely frequency-widened terahertz wave generation using Cherenkov-type radiation“. In: *Opt Express* 17.8 (Apr. 2009), S. 6676–6681.
- [70] A. M. Cook, R. Tikhoplav, S. Y. Tochitsky u. a. „Observation of Narrow-Band Terahertz Coherent Cherenkov Radiation from a Cylindrical Dielectric-Lined Waveguide“. In: *Phys. Rev. Lett.* 103 (Aug. 2009), S. 095003.
- [71] J. Hebling, K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann u. a. „Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities“. In: *Journal Of The Optical Society Of America B-Optical Physics* 25.7 (Juli 2008), B6–B19.
- [72] D. Grischkowsky, S. Keiding, M. Van Exter u. a. „Far-infrared time-domain spectroscopy with terahertz beams of dielectrics and semiconductors“. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 7.10 (1990), S. 2006–2015.
- [73] J. Hebling. „Derivation of the pulse front tilt caused by angular dispersion“. In: *Optical and Quantum Electronics* 28.12 (1996), S. 1759–1763.
- [74] Q. Wu und X.-C. Zhang. „Free-space electro-optics sampling of mid-infrared pulses“. In: *Applied Physics Letters* 71.10 (1997), S. 1285–1286.
- [75] A. Nahata, A. S. Weling und T. F. Heinz. „A wideband coherent terahertz spectroscopy system using optical rectification and electro-optic sampling“. In: *Applied Physics Letters* 69.16 (1996), S. 2321–2323.
- [76] A. Nahata, D. H. Auston, T. F. Heinz u. a. „Coherent detection of freely propagating terahertz radiation by electro-optic sampling“. In: *Applied Physics Letters* 68.2 (1996), S. 150–152.
- [77] Y. Cai, I. Brener, J. Lopata u. a. „Coherent terahertz radiation detection: Direct comparison between free-space electro-optic sampling and antenna detection“. In: *Applied Physics Letters* 73.4 (1998), S. 444–446.



- [78] P. Welch. „The use of fast Fourier transform for the estimation of power spectra: a method based on time averaging over short, modified periodograms“. In: *Audio and Electroacoustics, IEEE Transactions on* 15.2 (1967), S. 70–73.
- [79] J. W. Cooley, P. A. Lewis und P. D. Welch. „The fast Fourier transform and its applications“. In: *Education, IEEE Transactions on* 12.1 (1969), S. 27–34.
- [80] H. J. Nussbaumer. *Fast Fourier transform and convolution algorithms*. 1982.
- [81] K. Yamashita, A. Murata und M. Okuyama. „Miniaturized infrared sensor using silicon diaphragm based on Golay cell“. In: *Sensors and Actuators A: Physical* 66.1 (1998), S. 29–32.
- [82] A. C. Boccara, D. Fournier und J. Badoz. „Thermo-optical spectroscopy: Detection by the “mirage effect”“. In: *Applied Physics Letters* 36.2 (1980), S. 130–132.
- [83] H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard u. a. „Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in  $\text{LiNbO}_3$ “. In: *Applied Physics Letters* 98.9 (2011), S. 091106.
- [84] D. M. Mittleman, M. Gupta, R. Neelamani u. a. „Recent advances in terahertz imaging“. In: *Applied Physics B* 68.6 (1999), S. 1085–1094.
- [85] S. Hunsche, M. Koch, I. Brener u. a. „THz near-field imaging“. In: *Optics Communications* 150.1 (1998), S. 22–26.
- [86] M. C. Hoffmann, K.-L. Yeh, J. Hebling u. a. „Efficient terahertz generation by optical rectification at 1035 nm“. In: *Optics Express* 15.18 (2007), S. 11706–11713.
- [87] A. Knöck. „Erzeugung starker Terahertzpulse in Lithiumnioba“. Diss. Philipps Universität Marburg.
- [88] N. Köster. „Kohärente optische Prozesse und inkohärente Ladungsträgerdynamik in Germanium“. Diss. 2012.

- [89] C. F. Klingshirn. *Semiconductor Optics*. 3rd. Springer-Verlag, Berlin, 2006.
- [90] J. T. Steiner, M. Kira und S. W. Koch. „Semiconductor excitons in strong terahertz fields“. In: *physica status solidi (c)* 6.2 (2009), S. 504–507.
- [91] A. D. Jameson, J. L. Tomaino, Y.-S. Lee u. a. „Transient optical response of quantum well excitons to intense narrowband terahertz pulses“. In: *Applied Physics Letters* 95.20 (2009), pages.
- [92] D. Golde, M. Kira, T. Meier u. a. „Microscopic theory of the extremely nonlinear terahertz response of semiconductors“. In: *physica status solidi (b)* 248.4 (2010), S. 863–866.
- [93] B. Mollow. „Power Spectrum of Light Scattered by Two-Level Systems“. In: *Physical Review* 188.5 (1969), S. 1969–1975.
- [94] I. Rabi. „Space quantization in a gyrating magnetic field“. In: *Physical Review* 51.8 (1937), S. 652.
- [95] J. Steiner, M. Kira und S. Koch. „Optical nonlinearities and Rabi flopping of an exciton population in a semiconductor interacting with strong terahertz fields“. In: *Phys Rev B* 77.16 (2008).
- [96] G. Khitrova, H. M. Gibbs, M. Kira u. a. „Vacuum Rabi splitting in semiconductors“. In: *Nature Physics* 2.2 (2006), S. 81–90.
- [97] A. Schülzgen, R. Binder, M. Donovan u. a. „Direct observation of excitonic Rabi oscillations in semiconductors“. In: *Physical review letters* 82.11 (1999), S. 2346–2349.
- [98] I. Rabi. „Space Quantization in a Gyrating Magnetic Field“. In: *Physical Review* 51.8 (1937), S. 652–654.
- [99] S. Autler und C. Townes. „Stark Effect in Rapidly Varying Fields“. In: *Physical Review* 100.2 (1955), S. 703–722.

- [100] M. Wagner, H. Schneider, D. Stehr u. a. „Observation of the Intraexciton Autler-Townes Effect in GaAs/AlGaAs Semiconductor Quantum Wells“. In: *Physical Review Letters* 105.16 (2010), S. 167401.
- [101] J. Steiner. „Microscopic Theory of Linear and Nonlinear Terahertz Spectroscopy of Semiconductors“. Diss. 2008.
- [102] H. Hirori, M. Nagai und K. Tanaka. „Excitonic interactions with intense terahertz pulses in ZnSe/ZnMgSSe multiple quantum wells“. In: *Physical Review B* 81.8 (2010), S. 081305.
- [103] M. Teich, M. Wagner, D. Stehr u. a. „Systematic investigation of THz-induced excitonic Rabi splitting“. In: *eingereicht* (2013), S. 1–5.
- [104] Y. Nakamura, Y. A. Pashkin und J. S. Tsai. „Coherent control of macroscopic quantum states in a single-Cooper-pair box“. In: *Nature* 398.6730 (1999), S. 786–788.
- [105] S. Osnaghi, P. Bertet, A. Auffeves u. a. „Coherent control of an atomic collision in a cavity“. In: *Physical Review Letters* 87.3 (2001), S. 037902.
- [106] W. S. Warren, H. Rabitz und M. Dahleh. „Coherent control of quantum dynamics: the dream is alive“. In: *Science* 259.5101 (1993), S. 1581–1589.
- [107] D. Meshulach und Y. Silberberg. „Coherent quantum control of two-photon transitions by a femtosecond laser pulse“. In: *Nature* 396.6708 (1998), S. 239–242.
- [108] N. H. Bonadeo, J. Erland, D. Gammon u. a. „Coherent optical control of the quantum state of a single quantum dot“. In: *Science* 282.5393 (1998), S. 1473–1476.
- [109] C. Kubler, R. Huber, S. Tubel u. a. „Ultrabroadband detection of multi-terahertz field transients with GaSe electro-optic sensors: Approaching the near infrared“. In: *Applied Physics Letters* 85.16 (2004), S. 3360–3362.

- [110] A. A. Chernikov. „Time-resolved photoluminescence spectroscopy of semiconductors for optical applications beyond the visible spectral range“. Diss. 2012.
- [111] L. Rayleigh. „X. On the electromagnetic theory of light“. In: *The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science* 12.73 (1881), S. 81–101.
- [112] J. Feldmann, G. Peter, E. O. Göbel u. a. „Linewidth dependence of radiative exciton lifetimes in quantum wells“. In: *Phys. Rev. Lett.* 59 (20 Nov. 1987), S. 2337–2340.
- [113] M. Gurioli, F. Bogani, S. Ceccherini u. a. „Coherent vs incoherent emission from semiconductor structures after resonant femtosecond excitation“. In: *Physical Review Letters* 78.16 (1997), S. 3205–3208.
- [114] S. Haacke, R. A. Taylor, R. Zimmermann u. a. „Resonant femtosecond emission from quantum well excitons: The role of Rayleigh scattering and luminescence“. In: *Physical Review Letters* 78.11 (1997), S. 2228–2231.
- [115] H. Wang, J. Shah, T. C. Damen u. a. „Spontaneous emission of excitons in GaAs quantum wells: The role of momentum scattering“. In: *Physical Review Letters* 74.15 (1995), S. 3065–3068.
- [116] M. Woerner und J. Shah. „Resonant secondary emission from two-dimensional excitons: femtosecond time evolution of the coherence properties“. In: *Physical Review Letters* 81.19 (1998), S. 4208–4211.
- [117] M. Kira, F. Jahnke und S. W. Koch. „Quantum theory of secondary emission in optically excited semiconductor quantum wells“. In: *Physical Review Letters* 82.17 (1999), S. 3544–3547.
- [118] B. Ewers, N. S. Koester, R. Woscholski u. a. „THz control of matter states: Coherent excitons beyond the Rabi-splitting“. In: *Quantum Electronics and Laser Science Conference*. Optical Society of America. 2012.

- [119] B. Ewers, N. Köster, R. Woscholski u. a. „Ionization of coherent excitons by strong terahertz fields“. In: *Phys Rev B* 85.7 (2012), S. 075307.



[REDACTED]

- [REDACTED]  
[REDACTED]
- [REDACTED]  
[REDACTED]
- [REDACTED]  
[REDACTED]
- [REDACTED]  
[REDACTED]  
[REDACTED]  
[REDACTED]  
[REDACTED]





## 7 SUMMERY

The recent advances in THz technology led to the development of very intense coherent sources. This technology opens a path to analyze and control coherent excitonic systems. In atomic systems these techniques were used for a variety of applications. These range from the control of photoluminescence over the preparation of quantum states to the entanglement of atoms or even QBits. The main focus of this thesis is the analysis of these processes in excitonic ensembles.

For the generation of strong pulsed THz sources there are several different established methods. Starting from an amplified fs-laser pulse with high peak intensity, optical rectification is the method of choice. This process is very efficient in  $LiNbO_3$  crystals. Due to the big difference of the diffraction index comparing the NIR and the THz regime, the conversion is done in Cherenkov geometry. Besides the efficient conversion,  $LiNbO_3$  unfortunately also has a non negligible absorption index for THz radiation. To optimizing the useable THz field strength, a novel generation geometry is developed. The idea is to decouple generation and out coupling of the THz radiation. Whereas  $LiNbO_3$  is used for the optical rectification process, a  $Si$  prism is utilized for the out coupling of the generated radiation. Having an absorption coefficient of about a factor of 1000 less than  $LiNbO_3$ , silicon is the ideal material for the propagation of the created THz radiation. This geometry overcomes the major drawback of the classical Cherenkov approach. The generated THz pulses can reach field strength of more than 50 kV/cm and cover a frequency range of 0.2 THz to 3 THz. In addition the homogeneous emission profile allows realizing small focal spots.

The strong THz source was used to analyze the excitonic polarization dynamic of a  $Ga(In)As$  semiconductor quantum well. The results show for the first time the signatures of a Rabi-oscillation between the  $|1s\rangle$ - and  $|2p\rangle$  state which lead to an Autler-Townes splitting of the excitonic resonance. Besides this, the measurement shows a rich dynamic, which is shown to be caused by broad range of exciton excitations even up to ionization. The findings are further analyzed by means of a many-particle microscopic theory. This reveals that the dynamic is fundamentally driven by the many-body properties of the system. Simple 2 states system descriptions as often used in the literature neglect these properties and thus fail to describe the full dynamic of the system.

For an even more controlled manipulation of the coherent system a strong THz source with a very narrow spectral width is used. This allows to precisely addressing the transitions between the excitonic states. Most notably is the excitonic  $|1s\rangle$  to  $|2s\rangle$  transition. When applying dipole selection rules, this transition should not be induced by the THz radiation. The measured transient optical properties of the excited system clearly show the presence of this excitation under the presence of THz radiation. This observation is a result of the many-body nature of the excitonic states. The coulomb-scattering induced mixing of the  $|2p\rangle$ - and  $|2s\rangle$  states breaks the initial symmetry of the states.

This allows to directly preparing an excitonic state for which a recombination of the exciton is forbidden. Thus suppressing it's photoluminescence. When driving the system to Rabi oscillations the succeeding repopulation of the initial  $|1s\rangle$  state also a recurrence of the photoluminescence is observed. This is the first observation of this „shelving“ in the THz regime.

The analysis of the polarization dependence of the luminescences reveals the secondary emission of the excitonic polarization.

The presence of Rabi oscillations between the  $|1s\rangle$ -state and the  $|2s\rangle$ -state are a direct proof of mixing of the  $|2p\rangle$ -state and the  $|2s\rangle$ -state. If there would only be a Coulomb scattering between two separated

states, a Rabi-oscillation would not be possible.

In summary it was shown that the coherent control of an excitonic system is possible. The inherent many-body interaction in this system however leads to some unique behaviors. On the one hand, the population of excitonic states with high quantum numbers was observed. This is caused by multi-photon processes and the mixing of the different quantum states. As this are the first steps to a full coherent control of an excitonic system, the potential of this system is still unclear.









